



HAL
open science

Etude des concentrations de gaz atmosphériques et estimation des flux de dépôt sec à l'échelle des principaux écosystèmes africains

Marcellin Adon

► **To cite this version:**

Marcellin Adon. Etude des concentrations de gaz atmosphériques et estimation des flux de dépôt sec à l'échelle des principaux écosystèmes africains. Océan, Atmosphère. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2011. Français. NNT: . tel-00650079

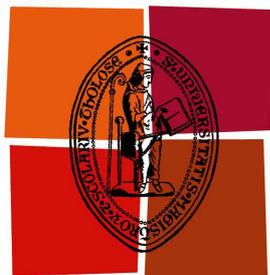
HAL Id: tel-00650079

<https://theses.hal.science/tel-00650079>

Submitted on 9 Dec 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Université
de Toulouse

UNIVERSITÉ DE COCODY



THÈSE

EN COTUTELLE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE & DE L'UNIVERSITÉ DE COCODY-ABIDJAN

Délivré par :

l'Université Toulouse III-Paul Sabatier & l'Université de Cocody-Abidjan

Discipline ou spécialité :

Physique-Chimie de l'Atmosphère

Présentée et soutenue par

ADON Attoh Marcellin

Le 1^{er} Décembre 2011 à Toulouse

Titre :

Etude des concentrations de gaz atmosphériques et estimation des flux de dépôt sec à l'échelle des principaux écosystèmes africains.

JURY

Robert ROSSET, Professeur à l'Université Paul Sabatier (Toulouse), Président
Sylvie CAUTENET, Professeur à l'Université Blaise Pascal (Clermont-Ferrand), Rapporteur
Georges KOUADIO, Professeur à l'École Normale Supérieure (Abidjan), Rapporteur
Paul ASSAMOÏ, Professeur à l'Université de Cocody (Abidjan), Examinateur
Pierre HIERNAUX, Chercheur CNRS, (GET, Toulouse), Examinateur
Corinne GALY-LACAU, Ingénieur de recherche, HDR (LA, Toulouse), Directrice de thèse
Véronique YOBOUE, Professeur à l'Université de Cocody (Abidjan), Co-directrice de thèse

Ecole doctorale : *Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)*

Unités de recherche : *Laboratoire d'Aérodynamique (LA) & Laboratoire de Physique de l'Atmosphère et de Mécanique des Fluides (LAPA-MF)*

Directrices de Thèse : *Corinne GALY-LACAU & Véronique YOBOUE*

Rapporteurs : *Sylvie CAUTENET & Georges KOUADIO*

THÈSE

EN COTUTELLE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE & DE L'UNIVERSITÉ DE COCODY-ABIDJAN

Délivré par :

l'Université Toulouse III-Paul Sabatier & l'Université de Cocody-Abidjan

Discipline ou spécialité :

Physique-Chimie de l'Atmosphère

Présentée et soutenue par

ADON Attoh Marcellin

Le 1^{er} Décembre 2011 à Toulouse

Titre :

Etude des concentrations de gaz atmosphériques et estimation des flux de dépôt sec à l'échelle des principaux écosystèmes africains.

JURY

Robert ROSSET, Professeur à l'Université Paul Sabatier (Toulouse), Président
Sylvie CAUTENET, Professeur à l'Université Blaise Pascal (Clermont-Ferrand), Rapporteur
Georges KOUADIO, Professeur à l'Ecole Normale Supérieure (Abidjan), Rapporteur
Paul ASSAMOI, Professeur à l'Université de Cocody (Abidjan), Examineur
Pierre HIERNAUX, Chercheur CNRS (GET, Toulouse), Examineur
Corinne GALY-LACAUX, Ingénieur de recherche, HDR (LA, Toulouse), Directrice de thèse
Véronique YOBOUE, Professeur à l'Université de Cocody (Abidjan), Co-directrice de thèse

Ecole doctorale : *Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)*

Unités de recherche : *Laboratoire d'Aérodynamique (LA) & Laboratoire de Physique de l'Atmosphère et de Mécanique des Fluides (LAPA-MF)*

Directrices de Thèse : *Corinne GALY-LACAUX & Véronique YOBOUE*

Rapporteurs : *Sylvie CAUTENET & Georges KOUADIO*

*A la mémoire de mon père,
Adon KESSIEDOU*

*A ma mère
A ma famille*

REMERCIEMENTS

Un travail de thèse, bien qu'étant une aventure personnelle formidablement enrichissante, ne peut être mené sans le soutien et la confiance d'un grand nombre de personnes. Je tiens à les remercier ici chaleureusement. J'en oublierai certainement quelques-unes et je les prie de m'en excuser par avance.

Cette étude a été réalisée en alternance au Laboratoire d'Aérodynamique (LA, Toulouse, France) et au Laboratoire de Physique de l'Atmosphère et de Mécanique des Fluides (LAPA-MF, Abidjan, Côte d'Ivoire) dans le cadre du programme scientifique IDAF. Que les directeurs et les personnels de ces diverses structures veuillent bien accepter mes très sincères remerciements pour l'accueil qui m'a été réservé, et les facilités qui m'ont été accordées pour mon travail.

Mes remerciements vont particulièrement au Professeur Frank ROUX, Directeur du Laboratoire d'Aérodynamique, au Professeur Patrick MASCART, Directeur de l'Ecole Doctorale SDU2E et au Professeur Paul ASSAMOI de l'Université de Cocody, Directeur du LAPA-MF, qui me fait l'honneur de faire partie du Jury de ma thèse.

Je profite pour remercier tous les autres membres du Jury. Merci à mes rapporteurs, Professeur Sylvie CAUTENET et Professeur Georges KOUADIO, d'avoir accepté d'évaluer mes travaux de thèse et pour l'attention qu'ils y ont consacré. Merci au Professeur Robert ROSSET d'avoir présidé mon Jury de thèse et à Mr Pierre Hiernaux d'avoir jugé ce travail.

Je tiens tout particulièrement à exprimer ma gratitude à mes deux directrices de thèse, Véronique YOBOUE (LAPA-MF) et Corinne GALY-LACAU (LA), qui ont bien voulu m'accueillir dans leur équipe et diriger mon travail.

J'exprime donc ma profonde reconnaissance au Professeur Véronique YOBOUE de l'Université de Cocody-Abidjan qui a guidé mes premiers pas dans la recherche depuis le DEA. Son aide précieuse et son soutien inestimable ont permis d'améliorer considérablement la qualité de ce travail de thèse. Merci Professeur, pour votre appui scientifique, le suivi attentif de mes travaux sans oublier votre grande disponibilité ! Je lui suis aussi reconnaissant d'avoir favorisé la cotutelle de cette thèse avec le Laboratoire d'Aérodynamique de Toulouse où j'ai pu avancer dans mes travaux de thèse, notamment la partie modélisation.

Je tiens également à remercier ma co-directrice de thèse, Corinne GALY-LACAU, Coordinatrice du réseau IDAF, pour m'avoir communiqué sa grande passion pour le travail de recherche sur les dépôts des composés atmosphériques, notamment les composés azotés. Elle n'a pas hésité à me consacrer beaucoup de temps, avec toute son expertise, ses précieux conseils et ses explications qui m'ont permis de mener à bien ce travail de thèse qui s'est avéré passionnant. Je profite pour lui dire merci pour m'avoir trouvé les financements pour les différents séjours de stage au Laboratoire d'Aérodynamique.

Merci à toutes les deux pour votre gentillesse, vos encouragements, votre ouverture d'esprit,... bref, pour vos qualités humaines et relationnelles.

Je remercie également tous les chercheurs de l'équipe «Emissions, Dépôts et Impacts» (EDI) du Laboratoire d'Aérodynamique pour leur soutien, leur conseil... J'ai appris dans cette équipe ce qu'est la coopération dans la recherche.

La partie modélisation de cette thèse n'aurait pu voir le jour sans la contribution efficace de Fabien SOLMON. Il était toujours là dès qu'un « bug pointait le bout de son nez ». Il a donné beaucoup de son temps et je lui suis vraiment reconnaissant.

Comment ne saurais-je apprécier la collaboration étroite de Claire DELON dans mes travaux de recherche ? Nous avons beaucoup échangé sur les différents résultats de mes travaux. Je tiens sincèrement à lui témoigner ma gratitude.

Un grand merci à Catherine Liousse (Chef d'équipe « EDI »), Jean-Pierre Lacaux, Veronique Pont, Dominique Serca, Eric Gardrat, Pierre Castera, Gaelle Uzu, Fiona Tummon, Thierno Doumbia, Marie Ouafu, Eric Assamoi (un ami et un « frère »),... pour le dynamisme et la bonne ambiance qui prévaut au sein de l'équipe.

Je remercie également le service informatique du Laboratoire d'Aérodynamique pour les nombreuses aides lors de mon séjour, notamment Laurent Cabanas, Jeremy Leclercq.

Je tiens aussi à exprimer ma reconnaissance à tous les chercheurs et professeurs du LAPA-MF qui m'ont fait bénéficier de leurs enseignements et de leurs expériences en matière de recherche. Mes remerciements s'adressent également à tous les doctorants du LAPA-MF pour leur soutien moral, leurs conseils et leur amitié.

J'exprime ma plus grande gratitude au Ministère de l'Education Nationale de la République de Côte d'Ivoire pour ma mise à disposition de l'Université de Cocody afin de faciliter mes travaux de recherche de thèse.

J'adresse mes remerciements au personnel du réseau IDAF, en particulier au personnel technique des stations IDAF.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à l'Agence Universitaire de la Francophonie (AUF) pour la bourse qu'elle m'a accordée pour la 3^{ème} année de ma thèse.

A mon épouse (Juliette SAGOU) et ma fille (Anne-Victoire), vous avez supporté et enduré mon absence au moment où j'aurais dû être près de vous. Vous m'avez soutenu dans cette épreuve plus que quiconque. Vous avez été pour moi une grande source de motivation. Merci pour Tout !

Toute ma reconnaissance à mes frères et sœurs, et amis pour leur prière, leur soutien permanent, encouragement, aide matérielle et morale qu'ils m'ont apportés.

Je ne saurais terminer sans remercier mes compagnons de toujours qui m'ont soutenu durant toutes ces périodes d'étude à Toulouse: Julien Yapi, Eric Assamoi, Bafétigué Ouattara, Armel Kaptue, Noël Grog... .

Pour finir, je dirais simplement merci à tous ceux qui, de près comme de loin, ont contribué à la réussite de ce travail de recherche.

Résumé

Auteur : Marcellin ADON

Titre : Etude des concentrations de gaz atmosphériques et estimation des flux de dépôt sec à l'échelle des principaux écosystèmes africains.

Directrices de thèse : Corinne GALY-LACAUX (LA) & Véronique YOBOUE (LAPA-MF)

Lieu et date de soutenance : Observatoire Midi-Pyrénées, Toulouse, France, le 1^{er}/12/2011

Résumé :

Ce travail de recherche, réalisé dans le cadre du programme IDAF, est une contribution à l'étude des dépôts des constituants majeurs atmosphériques à la surface de la terre, en Afrique tropicale. Il concerne l'étude des concentrations atmosphériques des gaz azotés (ammoniac, dioxyde d'azote, acide nitrique), du dioxyde de soufre (SO₂) et de l'ozone (O₃) et leur dépôt sec en Afrique de l'Ouest et Centrale. Les gaz ont été mesurés sur une base mensuelle par la technique des capteurs passifs sur une période de dix ans (1998-2007) dans sept sites IDAF représentatifs d'un transect d'écosystèmes : savanes sèches - savanes humides – forêts. La validation et l'analyse de la base de données décennales des « gaz IDAF » a permis d'établir les niveaux de concentrations caractéristiques de chaque écosystème et d'étudier leurs évolutions moyennes mensuelles, saisonnières, annuelles et interannuelles sur le transect d'écosystèmes. Les flux de dépôt sec ont été estimés par la méthode inférentielle à partir des vitesses de dépôt sec calculées en utilisant le modèle « big-leaf » de Zhang et al. (2003b). Dans le modèle de dépôt, les conditions de surface et météorologiques spécifiques aux sites IDAF ont été adaptées puis validées pour être représentatives de ces sites et ont ainsi permis de simuler les vitesses de dépôt sec représentatives des grands écosystèmes. Les variations moyennes mensuelles, saisonnières et annuelles des flux de dépôt sec des gaz (NO₂, HNO₃, NH₃, O₃, et SO₂) sont analysées dans l'objectif de réaliser un bilan de dépôt atmosphérique total (sec + humide) d'azote à l'échelle des écosystèmes africains. Le dépôt total d'azote est estimé respectivement à 6-9 kgN.ha⁻¹.an⁻¹, 7-10 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ et 13 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, en savane humides et en forêts, avec une contribution relative du dépôt sec sous forme gazeuse au dépôt total d'azote comprise entre 46 et 71% sur l'ensemble des écosystèmes. Un bilan émission-dépôt des composés azotés oxydés et réduits à l'échelle de chaque écosystème a été réalisé et a montré un flux d'émission totale de même ordre de grandeur que le dépôt moyen annuel d'azote pour les écosystèmes de savanes mais plus faible dans l'écosystème forestier. Enfin une analyse comparative entre les mesures IDAF de dépôt d'azote et, d'une part, le dépôt d'azote simulé par une analyse multi-modèle à l'échelle globale et d'autre part, avec les charges critiques d'eutrophisation existantes dans la littérature a permis une première évaluation de l'impact potentiel du dépôt total d'azote sur les écosystèmes tropicaux africains.

Mots clés : concentrations gazeuses, capteur passif, vitesse de dépôt sec, dépôt total, écosystèmes, Afrique de l'Ouest et Centrale, stations IDAF.

Discipline : Physique et Chimie de l'Atmosphère

Laboratoires : Laboratoire d'Aérologie (LA), OMP, 14 av. Ed. Belin, 31400 Toulouse, France (accueil) & Laboratoire de Physique de l'Atmosphère et de Mécanique des Fluides (LAPA-MF), 22 BP 582 Abidjan 22 (origine).

ABSTRACT

This research, conducted as part of IDAF (IGAC/DEBITS/AFrica*) program, is a contribution to the study of atmospheric constituent deposition on the surface of the earth, in tropical Africa. It concerns the study of atmospheric concentrations of nitrogen gases (ammonia, nitrogen dioxide, nitric acid), sulfur dioxide and ozone, and their dry deposition in West and Central Africa. The gases were measured on a monthly basis by the technique of passive samplers over a ten year period (1998-2007) at seven remote sites within the framework of the IDAF network. The sites are located to represent a transect of African ecosystems, i.e., dry savanna-wet savanna - forest. The validation and the analysis of the decadal IDAF database of " IDAF gases " allowed to establish (1) the levels of surface gaseous concentration characteristic of each major ecosystem and (2) to study their monthly, seasonal, annual and interannual mean variations on the transect of ecosystems. Dry deposition fluxes were estimated by the inferential method based on dry deposition velocities (V_d) calculated using the "big leaf" model of Zhang et al. (2003b). In the model of deposition, surface and meteorological conditions specific to IDAF sites have been adapted and validated in order to simulate V_d representative of major African ecosystems. The monthly, seasonal and annual mean variations of gaseous dry deposition fluxes (NO_2 , HNO_3 , NH_3 , O_3 , and SO_2) are analyzed. A budget of total nitrogen atmospheric deposition (dry + wet) is proposed at the African ecosystem scale. The total nitrogen deposition estimated is around $6\text{-}9 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$, $7\text{-}10 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ and $13 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ respectively in dry savannas, wet savannas and forests, with a relative contribution of dry deposition in the gaseous form to the total nitrogen deposition between 46 and 71% for all ecosystems. We have also established an emission-deposition budget of oxidized and reduced nitrogen compounds for each IDAF station. This budget shows that the total emission flux have the same order of magnitude of annual mean nitrogen deposition for the savannas ecosystems but is lower in the forested ecosystem. Finally, a comparative analysis between IDAF measurements of nitrogen deposition and (1) a global multi-model exercise and (2) critical loads of eutrophication is presented over the African tropical ecosystems.

Keywords: gaseous concentrations, passive samplers, dry deposition velocities, total deposition, West and Central Africa, IDAF stations.

*IGAC/DEBITS/AFrica: International Global Atmospheric Chemistry/ Deposition of Biogeochemically Important Trace Species/AFrica

TABLE DES MATIERES

Introduction générale.....	1
-----------------------------------	----------

Chapitre 1 : Sources des gaz traces atmosphériques dans les principaux écosystèmes africains.....	9
--	----------

1.1. Généralités sur les sources des gaz mesurés.	11
1.1.1. Les oxydes d'azote NO _x	11
1.1.2. L'acide nitrique (HNO ₃).....	13
1.1.3. L'ammoniac (NH ₃).....	13
1.1.4. Le dioxyde de soufre (SO ₂).....	15
1.1.5. L'ozone troposphérique (O ₃).....	17
1.2. Circulation atmosphérique et végétation en Afrique tropicale.....	19
1.2.1. Circulation atmosphérique en Afrique tropicale et le climat	19
1.2.2. Caractéristiques de la végétation en Afrique.....	22
1.3. Emissions des gaz traces dans les écosystèmes africains.....	26
1.3.1. Emissions liées aux feux de biomasse.....	26
1.3.2. Emissions biogéniques	30
1.4. Conclusion.....	32

Chapitre 2 : Approche expérimentale de mesure des concentrations des gaz et méthode de calcul des flux de dépôt sec.....	35
---	-----------

2.1. Caractéristiques et description des sites de mesure du réseau IDAF	37
2.1.1. Les sites en savane sèche	41
2.1.2. Les sites en savane humide	42
2.1.3. Les sites en forêt.....	43
2.2. Approche expérimentale : collecte et analyse des échantillons de gaz	44
2.2.1. Technique de mesure des gaz : capteur passif.....	44
2.2.2. Technique d'analyse des capteurs passifs : la chromatographie ionique.....	52
2.2.3. Validation des résultats : mesures et analyses.....	54
2.3. Méthode de calcul des flux de dépôt sec : méthode inférentielle (<i>inferential method</i>).....	57
2.3.1. Généralité sur le dépôt sec	58
2.3.2. Notion de couche limite de surface	59
2.3.3. Paramétrisation de la vitesse de dépôt sec	60
2.3.4. Présentation du modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b).....	63
2.4. Conclusion.....	74

Chapitre 3 : Analyse spatio-temporelle des concentrations de gaz à l'échelle des écosystèmes.....	75
--	-----------

3.1. Introduction	77
3.2. Résultats des mesures des gaz sur le transect savanes sèches-savanes humides-forêts	78
3.2.1. Le dioxyde d'azote (NO ₂)	78

3.2.2. L'acide nitrique (HNO ₃).....	84
3.2.3. L'ozone (O ₃).....	88
3.2.4. L'ammoniac (NH ₃).....	93
3.2.5. Le dioxyde de soufre (SO ₂).....	97
3.3. Conclusion.....	100
3.4. Article: Long term measurement of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in Africa using passive sampler (Adon et al., 2010).....	102

Chapitre 4 : Estimation des flux de dépôt sec des gaz.....105

4.1. Estimation de la vitesse de dépôt sec par le modèle big leaf de Zhang et al. (2003b)....	107
4.1.1. Validité des paramètres d'entrée pour les sites IDAF.....	107
4.1.2. Sensibilité du modèle à certains paramètres d'entrées.....	115
4.1.3. Résultats des simulations des vitesses de dépôt sec des gaz.....	124
4.2. Résultats des estimations des flux de dépôt sec.....	131
4.2.1. Flux de dépôt sec des gaz azotés (NO ₂ , HNO ₃ et NH ₃).....	132
4.2.2. Flux de dépôt sec d'ozone (O ₃).....	145
4.2.3. Flux de dépôt sec du dioxyde de soufre (SO ₂).....	147
4.3. Incertitudes dans l'estimation des flux de dépôt sec.....	152
4.4. Conclusion.....	153

Chapitre 5 : Bilan de l'azote atmosphérique à l'échelle des écosystèmes africains.....155

5.1. Introduction.....	157
5.2. Bilan des dépôts atmosphériques d'azote à l'échelle des écosystèmes africains.....	159
5.2.1. Le dépôt humide d'azote.....	159
5.2.2. Le dépôt sec d'azote.....	167
5.2.3. Bilan du dépôt atmosphérique total d'azote à l'échelle des écosystèmes africains.....	169
5.3. Bilan émission-dépôt des principales espèces azotées à l'échelle des écosystèmes africains.....	174
5.3.1. Emission des composés azotés gazeux.....	174
5.3.2. Bilan émission-dépôt des composés azotés oxydés.....	176
5.3.3. Bilan émission-dépôt des composés azotés réduits.....	180
5.3.4. Bilan annuel émission-dépôt des composés azotés.....	183
5.4. Comparaison des flux de dépôt d'azote : mesures IDAF, modèles globaux.....	185
5.4.1. Mesures IDAF et multi modèle global de Dentener et al. (2006).....	185
5.4.2. Dépôt total d'azote dans les écosystèmes africains et charges critiques d'eutrophisation.....	192
5.5. Conclusion.....	194

Conclusion générale et perspectives.....197

Références bibliographiques.....203

Liste des figures.....231

Liste des tableaux.....235

Acronymes.....239
Annexes.....243

Introduction générale

L'évolution de la composition chimique de l'atmosphère et l'impact de ces changements sur l'environnement représentent une problématique scientifique majeure, particulièrement dans les régions tropicales reconnues comme étant le siège d'une chimie atmosphérique très réactive. En effet, à l'échelle globale, les régions tropicales sont d'importantes régions sources de gaz et particules à travers les émissions des feux de biomasse (feux de savane, feux de forêt), et aussi par la végétation et les sols. La dynamique atmosphérique tropicale modulée par l'activité convective des régions tropicales assure une redistribution particulière des gaz en trace, via le transport convectif et la circulation de grande échelle. Les émissions en zone tropicale peuvent donc affecter les concentrations des oxydants et le climat à l'échelle globale. En outre, Les tropiques représentent 40% de la biomasse globale continentale et l'activité de cette biosphère influe largement sur la composition de l'atmosphère globale. De plus, ce milieu est encore en partie dans son état naturel et la pression démographique croissante est amenée à induire une forte augmentation de ces émissions (destruction des forêts tropicales, désertification...) dans les prochaines décennies. Ces émissions ont un impact sur le bilan radiatif de la terre (effet de serre additionnel) et aussi sur la réactivité chimique atmosphérique à l'échelle régionale et globale (modification de la capacité oxydante de l'atmosphère, acidification des précipitations, chimie stratosphérique...). Ainsi, les concentrations élevées de gaz traces et de particules, le fort contenu en vapeur d'eau, le rayonnement solaire intense (UV), associés au phénomène de convection profonde et aux concentrations en radicaux OH les plus élevées de la planète confèrent au milieu tropical une très grande réactivité chimique atmosphérique. L'étude de la chimie atmosphérique en milieu tropical est donc d'un intérêt particulier.

Au début des années 1990, la communauté internationale des chimistes de l'atmosphère a créé dans le cadre du programme IGBP (International Geosphere Biosphere Programme) le projet IGAC (International Global Atmospheric Chemistry).

La première phase du projet IGAC (1990-2006) a été riche et exaltante avec la réalisation de nombreux projets le plus souvent à l'échelle régionale: tropicale, boréale, polaire, tempérée et marine. Trois thèmes majeurs se sont dégagés: les interactions biosphère-atmosphère, la capacité oxydante de l'atmosphère et l'étude des aérosols atmosphériques. Plusieurs centaines d'articles, des numéros spéciaux ainsi que des livres ont été produits. On peut

retrouver l'essentiel des travaux d'IGAC de la première phase dans la remarquable synthèse publiée en 2003: Atmospheric Chemistry in a Changing World, éditée par G. Brasseur, R. Prinn et A.P. Pszenny chez Springer.

Dans ce contexte, l'importance des zones tropicales en chimie atmosphérique et leur influence aux échelles régionales et globales a été mise en évidence au cours des vingt dernières années par de nombreuses campagnes de mesures. On peut citer GTE/ABLE 2A et 2B (1995 et 1997), LBA (1999 et 2002) en Amazonie, TRACE-A (1992) sur l'Atlantique tropicale, DECAFE (1988), EXPRESSO (1996), STARE-SAFARI (1992), SAFARI (2000) en Afrique, et AMMA (2006) en Afrique de l'Ouest et Centrale. Ces études ont particulièrement documenté les émissions de gaz et particules, la chimie et le transport dans la basse et moyenne troposphère. Ces campagnes ont permis d'étudier les émissions des sources de combustion de biomasse et biogénique par les sols et la végétation. Elles ont aussi permis de quantifier, pour chaque écosystème étudié, les concentrations et les facteurs d'émission des espèces gazeuses. Spécial issue DECAFE 1992, SAFARI 1996, EXPRESSO 1999 AMMA 2010.

Le projet IGAC a favorisé, tout au long de son déroulement, la création d'observatoires de chimie atmosphérique pour suivre les évolutions de la composition de l'atmosphère aux échelles locale et globale. Dans ce but, IGAC a maintenu une forte connexion avec le programme de suivi à long terme GAW (Global Atmospheric Watch) de WMO (World Meteorological Organization). Dans ce cadre, le réseau de mesure IDAF (IGAC/DEBITS/AFrique) a été initié depuis une quinzaine d'années (1995).

Le service d'observation **IDAF** labellisé SO/ORE (Service d'Observation/Observatoire de Recherche en Environnement) a pour objectif d'étudier l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère et des dépôts en Afrique. Récemment (fin 2009), le programme IDAF a été de nouveau évalué positivement par le Comité Inter Organisme de l'Environnement (INSU, CNRS, IRD, CNES, ...) qui a renouvelé sa labellisation jusqu'en 2012.

Le réseau IDAF est composé de 10 stations représentatives des écosystèmes africains : savane sèche - savane humide - forêt, chacune sous la responsabilité d'un scientifique africain Principal Investigateur (PI): 7 en Afrique de l'Ouest et Centrale (Mali, Niger, Côte d'Ivoire, Bénin, Cameroun, Congo) et 3 en Afrique du Sud. La partie du réseau IDAF sous label INSU concerne les 7 stations régionales d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Ces stations sont

coordonnées par le Laboratoire d'Aérologie de Toulouse. Les 3 stations d'Afrique du Sud sont coordonnées par la North West University de Potchefstroom en Afrique du Sud.

Les mesures IDAF à long terme et de qualité contrôlée (label WMO) permettent, suivant le temps d'échantillonnage, d'analyser les tendances journalières, hebdomadaires, saisonnières et interannuelles des concentrations atmosphériques des gaz et aérosols, et de la composition chimique des pluies à l'échelle régionale et continentale. Elles permettent d'étudier les mécanismes des dépôts atmosphériques secs et humides, d'améliorer nos connaissances sur les cycles biogéochimiques atmosphériques, d'évaluer leur impact sur le climat et la santé, et de fournir des paramètres utiles à d'autres disciplines telles que l'hydrologie, l'agronomie et l'écologie.

Le SO IDAF fait partie du réseau international **IGAC DEBITS** (**I**nternational **G**lobal **A**tmospheric **C**hemistry, **D**Eposition of **B**iogeochemically **T**race **S**pecies). Ces procédures expérimentales contrôlées assurent la comparaison de ces mesures aux autres écosystèmes tropicaux plus ou moins anthropisés en Asie et en Amérique du Sud. Il est aussi reconnu comme réseau long terme de mesure en régions tropicales participant au programme WMO GAW (**W**orld **M**eteorological **O**rganization/ **G**lobal **A**tmospheric **W**atch). La mission de GAW participe à la stratégie IGACO (**I**nternational **G**lobal **A**tmospheric **C**hemistry **O**bservations) et son activité s'appuie sur des réseaux de mesure à l'échelle globale pour les GES (gaz à effet de serre), l'ozone, le rayonnement UV, certains gaz réactifs, les aérosols et la chimie des précipitations (Figure 1).



Figure 1: Illustration des missions et des activités du programme GAW de WMO, incluant dans les dépôts atmosphériques le réseau DEBITS/IDAF (Atmospheric Deposition).

En résumé, depuis 1995, le système d'observation IDAF constitue un réseau de mesure sol sur le continent africain qui documente l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère en milieu tropical. La base de données IDAF doit permettre des études d'impacts de cette évolution sur l'environnement au sens large (climat, cycle biogéochimique, hydrologique, santé...).

Ainsi, le réseau IDAF s'est intégré dans le consortium international des réseaux de mesure de dépôt atmosphérique (Figure 2). En 2009, une deuxième synthèse a été initiée par le SAG (Scientific Advisory Group) des experts en chimie des précipitations de l'Organisation météorologique Mondiale (OMM). Ce travail se trouve dans la continuité du rapport de 1995 et propose une revue actuelle des dépôts atmosphériques sur tout le globe. Cependant, les experts ont souligné qu'il était important dans ce nouvel effort de synthèse de prendre en considération à la fois les processus de dépôts humides et ceux de dépôt sec.

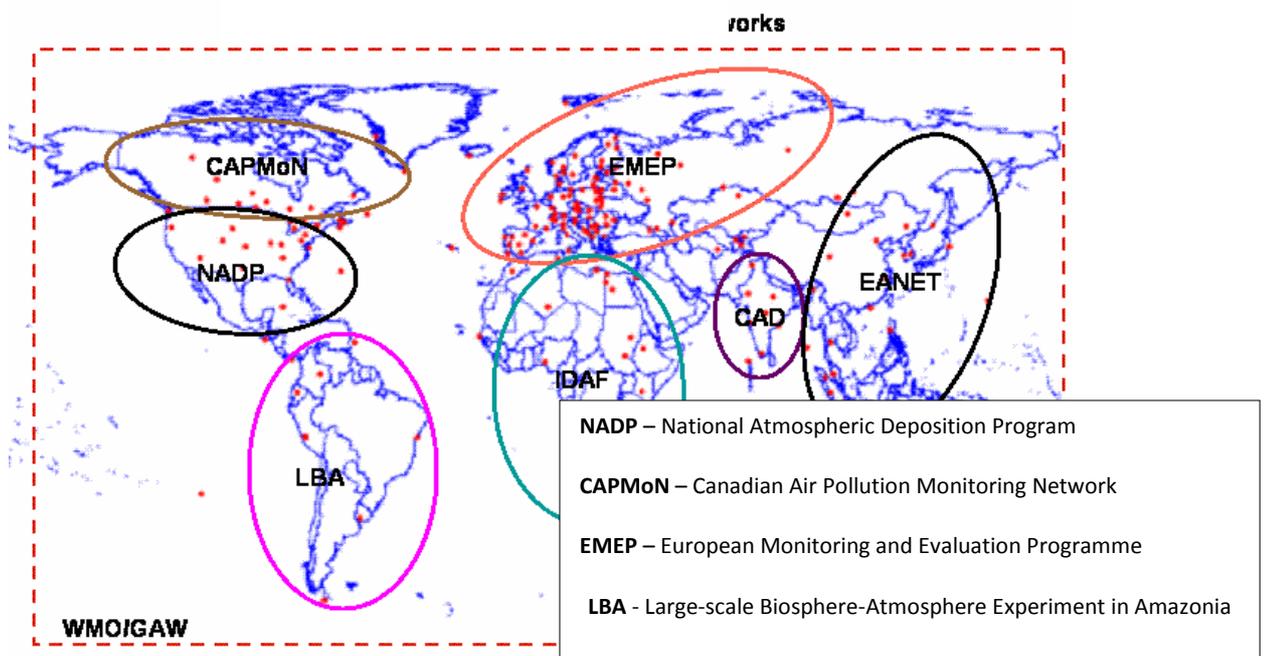


Figure 2 : Réseaux sol de suivi long terme de la composition chimique de l'atmosphère – Contribution au programme Global Atmospheric Watch/ WMO- Mesures standardisées normes internationales.

Ces dernières années, la compilation des données validées de chimie des précipitations IDAF a permis de réaliser plusieurs synthèses, écosystème par écosystème, avec pour objectifs communs :

- de Caractériser et de suivre sur le long terme la composition chimique des précipitations et quantifier les flux du dépôt humide associés;
- d'étudier et de mettre en évidence les processus qui régulent le contenu chimique des pluies et des dépôts humides par l'analyse de leurs relations avec les principales sources de gaz ou de particules atmosphériques émis par les écosystèmes;
- d'analyser les variations temporelles, saisonnières et interannuelles de la chimie des précipitations et des dépôts associés.

Les écosystèmes de savanes sèches d'Afrique du Sud ont été étudiés dans le cadre des travaux de Jonas Mphepya (2005 ; 2006). En Afrique de l'Ouest et Centrale, les différentes synthèses portent sur les sites de savanes sèches du Niger et du Mali (Galy et Modi, 1998 ; Galy-Lacaux et al, 2009, Laouali et al, 2010), de savanes humides en Côte d'Ivoire et au Bénin (Yoboué et al, 2005, Akpo et al, 2010) et de forêt au Cameroun (Sigha et al, 2003). Il est important de noter qu'à l'exception des sites de Djougou au Bénin et d'Agoufou au Mali, créés dans le cadre du programme AMMA (Analyse Multidisciplinaire de la Mousson Africaine) qui regroupent 3 à 5 années de mesures, tous les autres sites du service d'observation nous permettent aujourd'hui d'utiliser une base de données d'environ une dizaine d'années.

Dans l'objectif d'étudier le bilan de dépôt total d'azote atmosphérique, il apparaît important d'étudier et quantifier les dépôts secs à l'échelle des principaux écosystèmes africains (savane sèche, savane humide et forêt). Ainsi, le réseau IDAF assure le suivi, depuis une dizaine d'années, des concentrations gazeuses mensuelles en surface du dioxyde de soufre (SO₂), du dioxyde d'azote (NO₂), de l'acide nitrique (HNO₃), de l'ammoniac (NH₃) et de l'ozone (O₃). Ces gaz ont un rôle important sur la composition chimique atmosphérique tropicale qui elle-même influence significativement la chimie globale (notamment le potentiel oxydant de l'atmosphère) et in fine le climat. Certaines espèces comme l'ozone sont également des gaz à effet de serre et, à l'échelle régionale, ont un impact sur la qualité de l'air et la santé.

C'est dans ce cadre que j'ai débuté ma thèse en octobre 2008 en cotutelle entre le Laboratoire d'Aérodynamique UMR 5560 de Toulouse et le Laboratoire de Physique de l'Atmosphère de l'Université d'Abidjan (co-direction : V. Yoboué et C. Galy-Lacaux). J'ai commencé mes travaux de thèse par une synthèse des travaux de validation et de comparaison entre mesures

passives et actives, permettant ainsi de construire une base de données originale de 10 ans de concentrations de NO₂, HNO₃, NH₃, SO₂ et d'O₃ pour les 7 sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Les résultats validés obtenus ont été intégrés à la base de données du réseau IDAF (<http://idaf.sedoo.fr>).

Le premier objectif de ce travail de thèse, fondé principalement sur le suivi spatio-temporel de mesure de concentrations gazeuses sur le long terme, est de documenter les niveaux de concentrations en gaz représentatifs d'un écosystème, d'analyser les tendances et/ou les variations spatio-temporelles en fonction des sources d'émission et des paramètres climatologiques sur l'ensemble des écosystèmes africains d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Le second objectif est d'estimer les flux de dépôt sec à partir des mesures de concentrations de gaz, associées à des vitesses de dépôts secs calculées par modélisation. Enfin, le troisième objectif poursuivi dans ces travaux est d'établir un bilan de l'azote atmosphérique à l'échelle des écosystèmes africains. Le cycle de l'azote joue un rôle fondamental dans l'étude des échanges biosphère-atmosphère.

Ce manuscrit qui s'intitule « Etude des concentrations de gaz atmosphériques et estimation des flux de dépôt sec à l'échelle des principaux écosystèmes africains » comporte 5 chapitres.

Le **premier** présente les sources et les caractéristiques générales des gaz étudiés, ainsi que celles du continent africain en termes de climat et de végétations, et les principales sources d'émission des gaz traces dans les écosystèmes africains.

Le **deuxième chapitre** de mon mémoire de thèse, est consacré à la présentation du réseau de mesure IDAF et à l'approche expérimentale. Chaque site représentatif d'un grand écosystème à l'échelle régionale est décrit ainsi que les techniques et protocoles de mesure des concentrations de gaz atmosphériques. Ensuite, je présente le modèle de dépôt sec utilisé dans ce travail afin d'estimer et de valider le calcul de la vitesse de dépôt sec pour chaque espèce gazeuse sur le transect d'écosystème étudié : savane sèches-savanes humides-forêts. La méthode inférentielle est donc présentée.

Dans le **troisième chapitre**, je présente les résultats concernant la mesure des concentrations atmosphériques des gaz. L'étude a été réalisée sur des échantillons de gaz de dioxyde d'azote (NO₂), d'ammoniac (NH₃), d'acide nitrique (HNO₃), de dioxyde de soufre (SO₂) et d'ozone (O₃) collectés sur la période d'étude (1998-2007) dans les sites de mesures IDAF, représentatifs des principaux écosystèmes africains. Cette étude nous permet de déterminer l'évolution des concentrations de ces gaz sur des bases mensuelles, saisonnières, annuelles et

interannuelle dans chaque écosystème et de comparer ces variations le long du transect savane sèche- savane humide- forêt en relation avec des sources d'émissions.

Dans le **chapitre 4**, j'utilise le modèle de dépôt sec de Zhang et al. (2003b), décrit dans le chapitre 2, pour simuler les vitesses de dépôt sec de chaque gaz dans chaque écosystème. L'ensemble des résultats des mesures de concentrations (chapitre 3) et des vitesses de dépôt sec calculées par modélisation est utilisé pour estimer les flux de dépôt sec de chaque gaz sur le transect. Les variations mensuelles, saisonnières et annuelles des flux de dépôt sec sont présentées et un bilan du dépôt sec d'azote dans chaque écosystème est estimé.

Le bilan des dépôts atmosphériques d'azote à l'échelle des écosystèmes africains constitue le principal objectif du **chapitre 5**. Le dépôt total d'azote est estimé à partir du dépôt humide et du dépôt sec (gaz et particule). Un bilan émission-dépôt des principales espèces azotées à l'échelle des écosystèmes africains est présenté. Enfin, une comparaison est faite d'une part, entre les flux de dépôt d'azote estimés dans le cadre du programme IDAF et les flux simulés par les modèles globaux à l'échelle de la terre, et d'autre part entre nos valeurs de flux et celles de charges critiques d'eutrophisation existantes dans la littérature afin d'appréhender l'étude d'impact de ce dépôt sur les écosystèmes tropicaux d'Afrique de l'Ouest et Centrale.

Je termine ce manuscrit par une conclusion générale qui reprend tous les principaux résultats et les perspectives de ce travail de thèse.

Chapitre 1 :

Sources des gaz traces atmosphériques dans les principaux écosystèmes africains.

Sommaire

1.1. Généralités sur les sources des gaz mesurés.	11
1.1.1. Les oxydes d'azote NO _x	11
1.1.2. L'acide nitrique (HNO ₃).....	13
1.1.3. L'ammoniac (NH ₃).....	13
1.1.4. Le dioxyde de soufre (SO ₂).....	15
1.1.5. L'ozone troposphérique (O ₃).....	17
1.2. Circulation atmosphérique et végétation en Afrique tropicale.....	19
1.2.1. Circulation atmosphérique en Afrique tropicale et le climat	19
1.2.2. Caractéristiques de la végétation en Afrique.....	22
1.3. Emissions des gaz traces dans les écosystèmes africains	26
1.3.1. Emissions liées aux feux de biomasse.....	26
1.3.2. Emissions biogéniques	30
1.4. Conclusion.....	32

La majorité des espèces chimiques présentes dans l'atmosphère doivent leur existence à l'émission des gaz à la surface terrestre. Certains de ces gaz sont émis directement à la surface (émissions biogéniques, combustion de biomasse...), d'autres sont le résultat de l'oxydation photochimique. Leur élimination de l'atmosphère intervient soit par dépôt sec à la surface du globe (végétations, sols, océans), soit par lessivage dans la phase aqueuse des nuages et des précipitations, soit par oxydation en phase gazeuse.

Dans ce premier chapitre, nous présenterons d'abord les sources et les caractéristiques générales des gaz qui font l'objet de notre étude. Ensuite, pour se placer à l'échelle de l'Afrique (tropicale), nous donnerons une brève description de la dynamique des masses d'air ainsi que les caractéristiques générales de la végétation africaine. Finalement, nous présenterons les principales sources d'émission des gaz traces dans les écosystèmes africains. Ce chapitre va donc constituer une base de référence pour la contribution à l'interprétation de nos résultats expérimentaux qui sont exposés au chapitre 3.

1.1. Généralités sur les sources des gaz mesurés.

1.1.1. Les oxydes d'azote NO_x

Les oxydes d'azote (NO_x = NO + NO₂), sont essentiellement émis dans l'atmosphère sous forme de monoxyde d'azote (NO) qui se transforme ensuite rapidement en dioxyde d'azote (NO₂), plus toxique. Les oxydes d'azote sont fortement impliqués dans toute la chimie de la troposphère et de la stratosphère. Les sources des oxydes d'azote peuvent être d'origine anthropique ou naturelle. Le bilan des sources de NO_x à l'échelle globale est résumé dans le tableau (1.1).

Tableau 1.1 : Principales catégories de sources de NO_x à l'échelle globale (Delmas et al., 2005).

Sources (NO _x)		Estimations (TgN.an ⁻¹)
Naturelles	Sols.....	6
	Eclairs.....	4
	Total naturel	10
Anthropiques	Combustibles fossiles.....	22
	Combustion de biomasse.....	7
	Sols cultivés (fertilisation).....	4
	Total anthropique	33

Dans la troposphère, 75% des émissions de NO_x proviennent des sources anthropiques dues à la combustion d'énergies fossiles et de biomasse, d'une part, à partir de l'azote organique du combustible (provenant in fine des acides aminés des protéines), d'autre part, à partir de l'azote dans l'air. Les émissions dues à la combustion de combustibles fossiles résultent majoritairement de transport terrestres et aériens, des centrales électriques et des industries surtout dans l'hémisphère nord. Les combustions de biomasse (feux de savanes et forêts,...) sont caractéristiques des régions tropicales et subtropicales. Les sources naturelles de NO_x proviennent des éclairs (en altitude) et surtout des sols sujets aux processus microbiologiques de nitrification et dénitrification (en surface), expliqués ci-dessous.

En effet, le cycle microbiologique de l'azote (figure 1.1) dans les sols (engraissés ou naturels) contribue activement à l'émission d'oxydes d'azote.

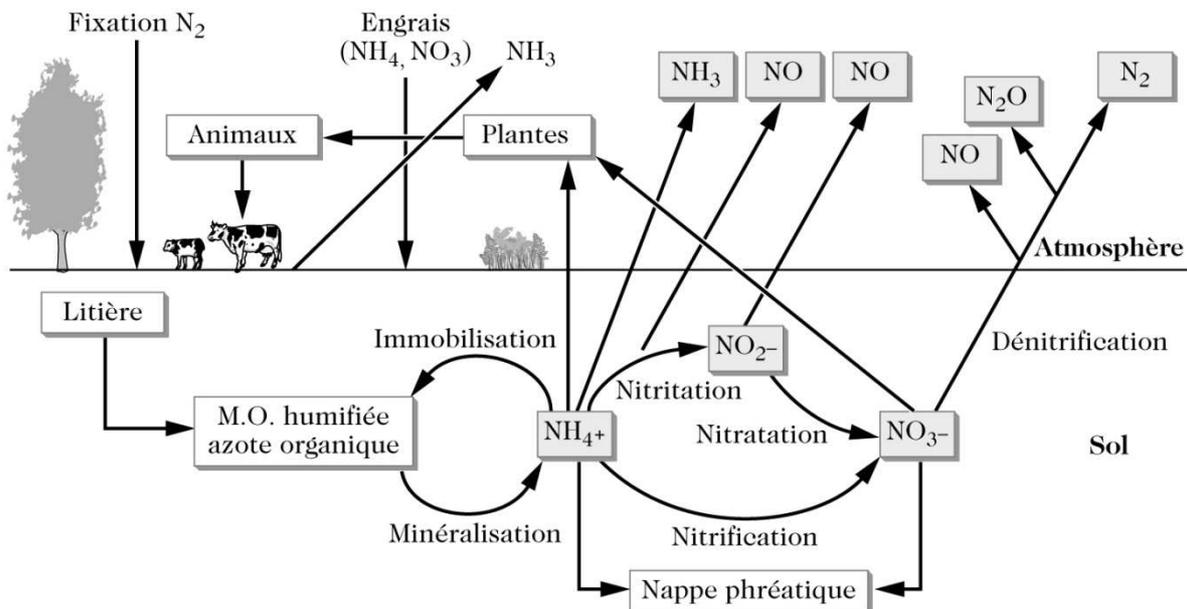


Figure 1.1 : Cycle de l'azote dans le sol et productions gazeuses associées (Delmas et al., 2005).

Sous forme moléculaire (N_2), l'azote n'est pas assimilable par la matière vivante. Il est fixé, puis transformé, par une enzyme complexe, la nitrogénase, en ion ammonium (NH_4^+) et en matière organique par des bactéries se trouvant dans les sols ou par des organismes fixés sur les racines de certaines plantes (symbiose sur les légumineuses). L'azote peut alors être assimilé par les plantes sous la forme de NH_4^+ , mais est plus généralement oxydé par des bactéries en nitrite (NO_2^-), puis en nitrate (NO_3^-), pour former l'azote organique de la biomasse. Ce processus, réalisé en milieu aérobie (présence d'oxygène) est appelé

nitrification et s'accompagne principalement d'émissions de NO, mais aussi de N₂O (oxyde nitreux). Cependant, les nitrates, formés par nitrification, peuvent aussi être réduits et régénérés en N₂ par des bactéries en milieu anaérobie (non strict) (absence d'oxygène ou faible pression partielle de dioxygène). Ce processus s'accompagne en grande partie d'émissions de N₂O, mais aussi de NO, c'est la **dénitrification**. La nitrification est considérée comme la source principale de la production de NO par les sols, tandis que la dénitrification est la source majeure de N₂O. Ces deux composés peuvent être émis vers l'atmosphère sous forme gazeuse lorsque les conditions de transfert liées à la porosité, et donc à l'humidité du sol, le permettent. Les processus biogéniques dans le sol représentent une source significative des NO_x de l'atmosphère (jusqu'à 40% du budget global selon Logan (1983)).

Une trop grande concentration de NO₂ dans l'atmosphère peut provoquer des nuisances aux personnes et à l'environnement. Associé à d'autres gaz irritants comme le dioxyde de soufre (SO₂), le dioxyde d'azote favorise les maladies respiratoires, surtout chez les enfants. Les oxydes d'azote sont également d'importants précurseurs de la formation de l'ozone troposphérique et responsable en partie de l'acidité des pluies. Les oxydes d'azote sont éliminés de l'atmosphère par dépôts sec et humide.

1.1.2. L'acide nitrique (HNO₃)

L'acide nitrique est essentiellement produit par réactions chimiques dans l'atmosphère à partir des molécules de NO₂ et des nitrates. En effet, une large fraction de NO émis est oxydée dans l'atmosphère par les réactions photochimiques en HNO₃ ou en nitrates organiques. Le principal puits de HNO₃ est son lessivage par les précipitations du fait de sa grande solubilité. Le temps de vie de HNO₃ est assez court mais relativement plus long que celui des NO_x (9 heures au sol). S'il n'est pas déposé au sol, HNO₃ peut être un réservoir pour les NO_x et régénérer ceux-ci, soit par photolyse, soit par oxydation avec des radicaux OH, en dehors des zones de production des NO_x. Cela lui confère un rôle important dans l'atmosphère, car il peut jouer le rôle de réservoir des oxydes d'azote réactifs. Un autre composé peut servir de réservoir de NO_x, le peroxy acétyl nitrate (PAN, CH₃COO₂NO₂), produit de l'oxydation de NO₂ avec l'acétaldéhyde (CH₃CHO).

1.1.3. L'ammoniac (NH₃)

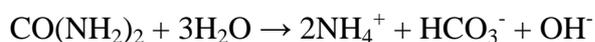
L'ammoniac est produit par des processus biologiques et donc présent dans différentes régions, polluées ou non. Comme l'ammoniac n'absorbe pas la lumière (UV), il ne participe pas directement aux réactions photochimiques de l'atmosphère. Toutefois, le NH₃ a une

grande importance dans la chimie de la troposphère à travers son influence sur la chimie des précipitations. Une importante quantité d'azote fixée se trouve sous la forme d'ammoniac. Les principales sources d'ammoniac dans l'atmosphère à l'échelle globale sont présentées dans le tableau (1.2).

Tableau 1.2 : Sources d'émissions d'ammoniac (NH₃) à l'échelle globale. Références : **A** - Schlesinger et Hartley (1992), **B** – Dentener et Crutzen (1994), et **C** – Bouwman et al. (1997).

Sources (NH ₃)		Estimations (TgN.an ⁻¹)		
		A	B	C
Naturelles	Ecosystèmes non perturbés (sols).....	10	5,1	2,4
	Animaux sauvages.....	-	2,5	0,1
	Mers et Océans.....	13	7,0	8,2
	Total naturel	23	14,6	10,7
Anthropiques	Elevage.....	32,3	22,5	21,6
	Sols cultivés (fertilisation).....	8,5	6,4	9,0
	Cultures (plantes).....	-	-	3,6
	Combustion de biomasse.....	5	2,0	5,7
	Combustibles fossiles.....	2,2	-	0,1
	Excréments humains.....	4	-	2,6
	Industrie.....	-	-	0,2
Total anthropique	50,0	30,9	42,8	

Dans les activités anthropiques, la principale source d'ammoniac, à l'échelle globale, est l'agriculture, et notamment l'élevage. En effet, l'ammoniac provient de la décomposition de l'urée (CO(NH₂)₂) et de l'acide urique, présents dans les excréments d'animaux, en ion ammonium NH₄⁺, sous l'action de l'hydrolyse microbiologique de l'urée par l'enzyme uréase présente dans les *faeces* (Bouwman et al., 1997) :



Cette action peut être aussi présente dans le sol où l'urée résiduelle, et d'autres composés azotés sont décomposés. En phase liquide, l'ammonium est en équilibre avec sa base conjuguée NH₃, qui elle-même est en équilibre avec NH₃ en phase gazeuse (Bouwman et al., 2002) :

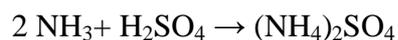


Où (aq) représente la phase aqueuse, (g) gazeuse, et (atm) la perte dans l'atmosphère.

L'ensemble de ces processus conduit à la volatilisation de l'ammoniac, qui dépend essentiellement du pH de la solution et de la température. Nous signalons que l'ammonium est aussi absorbé par les plantes où il est nitrifié (figure 1.1) avant d'être utilisé dans son métabolisme (Chaillou et Lamaze, 1997). Une part importante de l'azote dans les tissus végétaux est perdue sous formes de divers gaz azotés, y compris NH₃, lors de la combustion de biomasse (Lobert et al., 1990). A l'échelle globale, l'émission de NH₃ due à la combustion de biomasse a été estimée entre 5 et 5,7 TgN.an⁻¹ (Schlesinger et Hartley (1992) ; Bouwman et al. 1997) (Tableau 1.2).

L'ammoniac est également émis par les écosystèmes naturels. Les émissions proviennent de la décomposition de la matière organique à la surface du sol, des émissions par les plantes, des excréments d'animaux sauvages, et des océans.

L'ammoniac est le seul gaz alcalin naturel dans l'atmosphère. Il joue un rôle important dans la neutralisation (partielle) de l'acidité naturelle et anthropique dans l'atmosphère par des réactions de type (Schlesinger et Hartley, 1992) :



L'ammoniac gazeux réagit également avec l'acide nitrique gazeux (HNO₃) formant du nitrate d'ammonium NH₄NO₃ solide (formation de brumes) (Pio et Harrison, 1987), ou est dissout dans les gouttes d'eau acide des nuages. La dissolution de l'ammoniac, très efficace, neutralise l'acidité de l'eau de pluie en se combinant aux protons pour produire l'ion ammonium (NH₄⁺). Ainsi, on a en solution des sels de nitrate, sulfate et chlorure. L'ammoniac est éliminé de l'atmosphère par dépôt humide ou sec. Ces dépôts ont plusieurs impacts au niveau du sol et de la végétation. Ils interviennent dans l'enrichissement du sol en azote ammoniacal, ce qui développe la nitrification ainsi qu'une acidification du sol (Binkley et Richter, 1987). Les dépôts de composés azotés (NO_x et NH₃) sur le sol contribuent aussi à l'eutrophisation, qui est une forme naturelle de pollution de certains écosystèmes aquatiques qui se produit lorsque le milieu reçoit trop de matières nutritives assimilables par les algues et que celles-ci prolifèrent. Des dépôts de grandes quantités d'azote attaquent aussi la vitalité des forêts, peuvent influencer négativement la qualité des cultures, font diminuer la biodiversité et contribuent à la pollution des eaux de surface et des eaux souterraines (Brimblecombe et al., 2007).

1.1.4. Le dioxyde de soufre (SO₂)

Les composés soufrés, comme le dioxyde de soufre (SO₂), jouent un rôle très important dans la chimie atmosphérique, car ils déterminent la quantité de sulfates présents

dans l'atmosphère et influence donc le bilan radiatif de façon directe et indirecte (Delmas et al., 2005). Par ailleurs, l'acidité des précipitations est aussi fortement déterminée par la chimie du soufre, notamment dans les régions industrialisées.

Les émissions de soufre dans l'atmosphère peuvent être naturelles ou anthropiques, océaniques ou continentales. Les principales sources des composés soufrés sont présentées dans le tableau (1.3). Le dioxyde de soufre est le principal polluant d'origine anthropique du soufre. Il est essentiellement émis lors de la combustion du charbon et d'autres carburants fossiles, tous contenant du soufre (provenant des acides aminés soufrés), dans les secteurs de l'industrie, du chauffage urbain et du trafic (gazole). Les émissions anthropiques de composés soufrés sur l'ensemble du globe représentent approximativement 60 à 70% des émissions totales de soufre (Bates et al., 1992 ; Rhodes, 1999). La combustion de biomasse (feux de forêt, savane, déchets agricoles) est une source « significative » de SO₂ dans l'atmosphère (Bates et al., 1992 ; Arndt et al., 1997). A l'échelle globale, le flux de SO₂ dû aux feux de biomasse (d'origine naturelle ou anthropique) est estimé à 2-3 TgS.an⁻¹ (Andreae et al., 1990 ; Smith et al., 2001).

Tableau 1.3 : Sources de quelques composés soufrés à l'échelle globale (source : Delmas et al., 2005).

Sources (TgS.an ⁻¹)	H ₂ S	DMS	CS ₂	OCS	SO ₂	Total
Anthropiques						
Combustibles fossiles/industries....	2,2				70	71-77
Combustion de biomasse.....	<0,01		<0,01	0,075	2,8	2,2-3,0
Total anthropique						73-80
Naturelles						
Océans.....	<0,3	15-25	0,08	0,08		15-25
Zones inondées.....	0,006-1,1	0,03-0,68	0,06			0,01-2
Plantes et sols.....	0,17-0,53	0,05-0,16	0,05			0,25-0,8
Volcans.....	0,5-1,15			0,01	7-8	9,3-11,8
Total naturel						25-40

Les sources naturelles de dioxyde de soufre incluent les émanations des volcans (éruption), des océans, des décompositions biologiques. Le dioxyde de soufre (SO₂) est, soit directement émis par certaines de ces sources (l'activité volcanique), soit formé par oxydation des composés soufrés tels que le sulfure de diméthyle (DMS, CH₃SCH₃), le sulfure de carbonyle (OCS), le sulfure d'hydrogène (H₂S) et le disulfure de carbone (CS₂). La contribution de H₂S, CS₂ ou de OCS à la formation de SO₂ est négligeable dans la troposphère (Delmas et al.,

2005). En revanche, l'oxydation du DMS représente la principale voie de formation de SO₂ à partir des composés réduits. Le DMS résulte principalement de l'activité biologique dans les océans. Le sol et la biosphère sont également émetteurs de soufre dans l'atmosphère car le soufre fait partie des éléments nécessaires à la croissance des végétaux. Les flux globaux provenant de la biosphère sont mal quantifiés mais probablement faibles : 0,3 TgS.an⁻¹ (Bates et al., 1992), 1,2 TgS.an⁻¹ (Langner et Rhodes, 1991) ou 3,0 TgS.an⁻¹ (Macdonald et al., 2004).

L'oxydation de SO₂ conduit exclusivement au sulfate particulaire (SO₄²⁻) : le SO₂ peut être dissout puis oxydé en phase aqueuse ; il peut aussi être oxydé en phase aqueuse en acide sulfurique (H₂SO₄) qui évolue alors vers la phase particulaire, soit par nucléation (conversion gaz-particule), soit par condensation sur un aérosol préexistant. Le dioxyde de soufre (SO₂) est un gaz très soluble ; il est éliminé de l'atmosphère, soit par lessivage par les précipitations, soit par dépôt sec. Les autres espèces soufrées peuvent également être déposées au sol.

Dans l'atmosphère, le dioxyde de soufre se transforme principalement en acide sulfurique, qui se dépose au sol et sur la végétation. Cet acide contribue, en association avec d'autres polluants, à l'acidification et à l'appauvrissement des milieux naturels. Il participe aussi à la détérioration des matériaux utilisés dans la construction des bâtiments (pierre, métaux). La pollution acide peut être responsable de la dégradation des forêts, de l'altération des sols, de la disparition de la faune aquatique (lacs et rivières).

1.1.5. L'ozone troposphérique (O₃)

Contrairement à d'autres gaz, l'ozone n'est émis ni directement par des processus naturels, ni par les activités humaines : c'est donc un polluant secondaire. La principale source d'ozone troposphérique reste sa formation photochimique à partir des principaux précurseurs que sont le monoxyde de carbone (CO), le méthane CH₄ et les composés organiques volatils (COV) non-méthaniques, en présence d'oxydes d'azote (NO_x) :

Le cycle de formation et de destruction de l'ozone est le suivant :



M est une tierce molécule stable (N₂ ou O₂) et O({}^3P) est l'atome d'oxygène dans son état fondamental. Un état stationnaire s'établit donc entre NO, NO₂ et O₃ (R.1-R.3). Il n'y a donc production nette d'ozone que lorsque NO est converti en NO₂ par des réactions ne

consommant pas d'ozone. Ces réactions font intervenir les radicaux hydroperoxyde (HO_2) ou peroxyde (RO_2 , où R représente une chaîne organique). Ces radicaux (HO_2 et RO_2) résultent de l'oxydation des composés carbonés tels que le monoxyde de carbone (CO), le méthane (CH_4), et d'autres hydrocarbures (les composés organiques volatils, COV).

Ces polluants primaires, connus sous le nom de gaz précurseurs, sont produits au cours des combustions de biomasse et de combustibles fossiles. Certains NO_x et COV peuvent provenir de sources biologiques lorsque les émissions de la végétation et du sol sont maximales.

Il n'existe pas de relation linéaire entre concentration d'ozone et émission de ses précurseurs. Toutefois, la production d'ozone est sensible à la nature des émissions et en particulier, au ratio des émissions COV/ NO_x . Les relations de l'ozone et ses précurseurs peuvent être décrites d'après Silman (1999) par deux régimes chimiques principaux : le régime sensible aux NO_x , dit « NO_x limité » et le régime sensible aux COV, dit « COV limité ». En régime « NO_x limités », la production d'ozone augmente avec la quantité de NO_x disponible et change peu avec l'augmentation de COV. En régime « COV limité », l'ozone est sensible aux COV qui, en augmentant, accroissent la production d'ozone. Dans ce régime, l'ozone reste sensible aux NO_x , mais une augmentation des concentrations des NO_x diminue celles de l'ozone (Seinfeld et Pandis, 1998).

Le principal puits de l'ozone troposphérique est le dépôt sec à la surface de la terre. Il est aussi éliminé de l'atmosphère par réaction avec le monoxyde d'azote (NO) et par photodissociation. Pour de fortes concentrations, l'ozone a des effets néfastes sur la végétation (nécroses, jaunissement des feuilles) et sur la santé humaine. Chez l'homme, l'ozone pénètre facilement jusqu'aux voies respiratoires les plus fines. Elle provoque des toux et une altération pulmonaire, surtout chez les enfants et les asthmatiques, ainsi que des irritations oculaires. L'ozone est aussi un gaz à effet de serre qui contribue au réchauffement de la planète. Sa présence de plus en plus abondante dans la troposphère et sa réaction avec les autres gaz conduit à un accroissement du pouvoir oxydant de la troposphère.

Après une présentation générale des sources et caractéristiques des gaz atmosphériques azotés (NO_2 , HNO_3 et NH_3), du dioxyde de soufre (SO_2) et de l'ozone (O_3), nous allons donner les principales caractéristiques climatiques et de végétation du continent africain afin de présenter par la suite les principales sources d'émission des gaz traces spécifiques des écosystèmes africains.

1.2. Circulation atmosphérique et végétation en Afrique tropicale

D'une superficie de 30 221 532 km², l'Afrique représente 6% du globe terrestre et 20% des terres émergées. Le continent africain traverse l'équateur depuis les zones tempérées du Nord à celles du Sud. La mer Méditerranée au nord induit un climat méditerranéen tandis que d'autres climats sont créés avec la proximité de l'océan Indien au sud-est et celle de l'océan Atlantique à l'ouest. Cela fait de l'Afrique un continent immensément riche sur le plan climatique.

1.2.1. Circulation atmosphérique en Afrique tropicale et le climat

En Afrique tropicale, la circulation générale des masses d'air est gouvernée par la convergence de trois grandes masses d'air qui se développent sous l'influence de trois systèmes anticyclonique permanents, décrits succinctement ci-dessous :

- l'anticyclone des Açores (anticyclone nord africain) d'où proviennent les alizés du Nord-Est formant le flux de masse d'air chaud et sec appelé Harmattan ou alizé boréal;

- l'anticyclone de Saint Héléne (anticyclone de l'Atlantique Sud) dont sont issus les alizés du Sud-Est. Ces derniers se chargent lourdement en humidité au-dessus de l'océan, traversent l'équateur et sont alors déviés vers le Sud-Ouest. En arrivant sur les côtes africaines, ils forment le flux de mousson ou alizé austral;

- l'anticyclone de Madagascar (anticyclone de l'Océan indien) localisé au Sud-Est du continent dans l'Océan Indien.

La zone de convergence entre les flux d'Harmattan et de mousson sur le continent constitue une zone frontale appelée Zone de Convergence Intertropicale ZCIT (en anglais : ITCZ pour Inter Tropical Convergence Zone) ou Front Intertropicale (FIT). La surface de contact entre la mousson et les vents alizés de Sud-Est (air indien humide et instable) détermine la Confluence Intertropicale Océanique (CIO).

En Afrique de l'Ouest, la position de ZCIT permet de définir le type de climat observé. De janvier à juillet, le front de convergence progresse lentement vers le Nord jusqu'à atteindre son extension méridionale maximale (18 à 20° Nord), puis il revient à nouveau vers le Sud où sa progression s'arrête vers 5 à 7° Nord (Sultan et Janicot, 2003). A l'échelle annuelle, les positions les plus extrêmes de ces deux zones sont atteintes en janvier et juillet et illustrées sur la Figure 1.2.

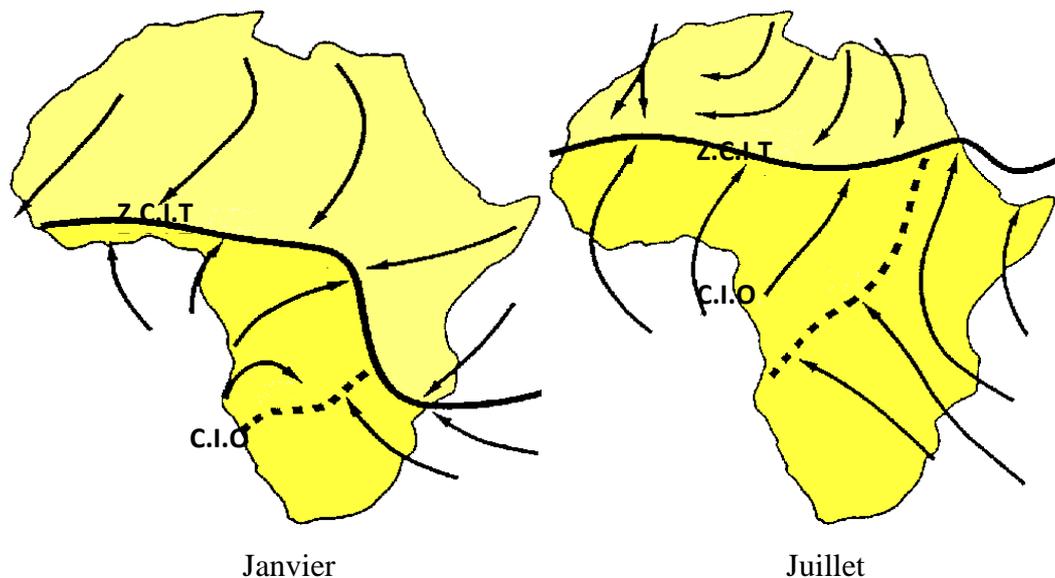


Figure 1.2 : Position extrême de la Zone de Convergence Intertropicale (Z.C.I.T) et de la Confluence Intertropicale Océanique (C.I.O) et les principaux flux des masses d'air à l'échelle de l'Afrique en Janvier et Juillet (Lacaux et al., 1992).

Le mouvement de la ZCIT accompagné de celui des différentes masses d'air (l'Harmattan et le flux de mousson) implique de fortes variations climatiques saisonnières, en induisant la saison sèche et la saison humide. La saison des pluies touche en effet les régions placées dans le flux de mousson et légèrement en retrait par rapport à la ZCIT. Là, sous les effets conjugués de la convergence des deux masses d'air et de la forte teneur en humidité du flux de mousson, d'énormes systèmes convectifs se développent et entraînent d'importantes précipitations. Celles-ci apparaissent près du Golfe de Guinée en avril, se déplacent suivant les latitudes plus hautes pour atteindre 10°N pendant l'été boréal, rebroussement chemin vers le Sud après mi-septembre jusqu'en octobre, manifestant ainsi la marche de la ZCIT (Sultan et Janicot, 2000 ; Le Barbe et al., 2002 ; Redelsperger et al., 2002). Les systèmes convectifs jouent un rôle prépondérant dans la redistribution et l'injection en haute troposphère de nombreux composés atmosphériques, et particulièrement des NO_x, provenant des éclairs, sols et combustions de biomasse (Jacob et al., 1996).

En altitude, trois courants-jets (ou vents forts) sont notables au dessus de l'Afrique de l'Ouest : le Jet d'Est Africain (JEA, situé autour de 14-16°N et vers 600 hPa, en anglais AEJ), qui est la dépression thermique saharienne (Thorncroft et Blackburn, 1999), le Jet d'Est Tropical (JET, situé autour de 10°N et 200 hPa, en anglais TEJ), associé à la mise en place de la mousson indienne, et enfin le Jet d'Ouest Subtropical (JOST, situé entre 25 et 30°N vers 200 hPa).

Le schéma 1.3 donne une vision 3-D qui résume les principales circulations dynamiques moyennes décrites précédemment.

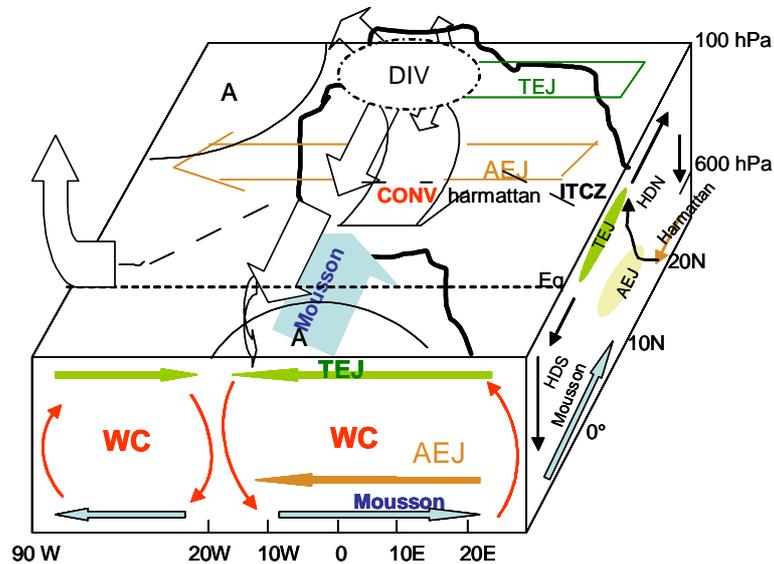


Figure 1.3 : *Eléments de la circulation atmosphérique (AEJ, TEJ, cellules de Hadley (HD) et de Walker (WC); ITCZ, mousson, harmattan) sur le continent africain (Livre Blanc AMMA, 2004).*

Les principaux climats en Afrique sont ceux répertoriés comme étant : aride, semi-aride, sub-humide et humide (figure 1.4). Cette variabilité spatiale extrême constitue une caractéristique fondamentale de l'Afrique où on note un gradient prononcé de précipitations annuelles qui diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne de l'équateur. Les précipitations annuelles moyennes varient de moins de 1 mm dans certaines parties du Sahara à environ 10 000 mm dans les montagnes de l'Ouest Cameroun (Debundscha). Elles constituent le facteur climatique dominant pour l'Afrique. Le principal facteur déterminant de la pluviométrie est la zone de convergence intertropicale (ZCIT). Les causes de la variabilité interannuelle des précipitations résident dans la structure des vents zonaux AEJ (African Easterly Jet) et TEJ (Tropical Easterly Jet) (Nicholson, 2008).

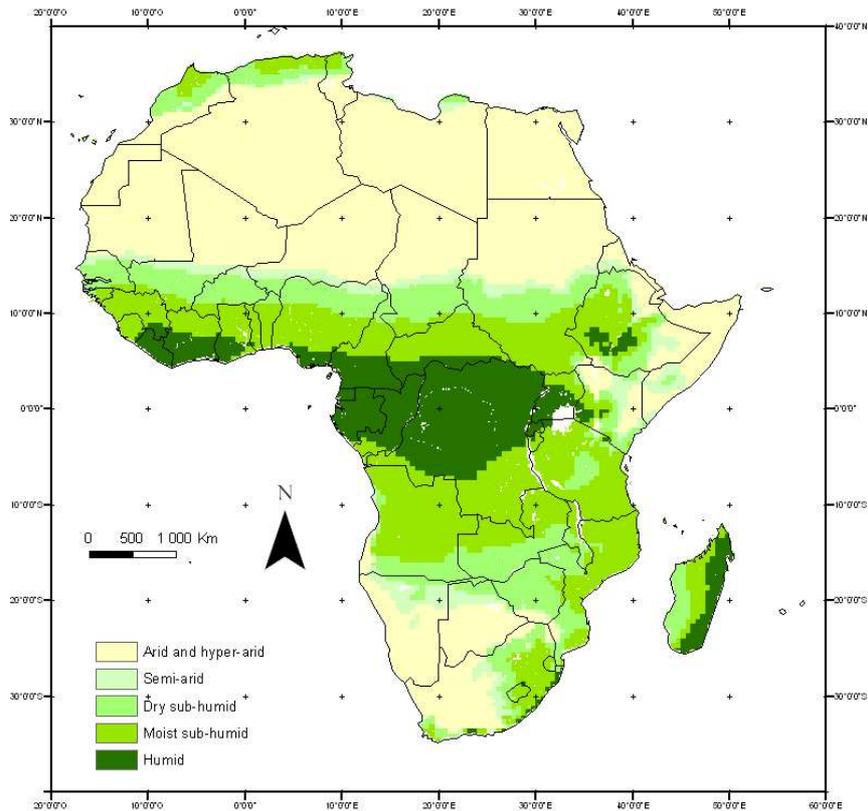


Figure 1.4 : *Climats en Afrique (d'après Fischer et al., 2002).*

1.2.2. Caractéristiques de la végétation en Afrique

Une description détaillée des principales végétations de l'Afrique s'avère non seulement nécessaire pour comprendre les différentes sources de gaz traces atmosphériques mais surtout pour l'étude d'estimation des flux de dépôt sec sur le transect savanes sèches-savanes humides-forêts, qui sera présentée dans le chapitre 4. En Afrique, on observe un lien étroit entre la pluviométrie et les grands types physiologiques de la couverture végétale. Comme il existe un gradient climatique s'étendant de l'hyper-humide à l'hyper-aride, les types de végétation s'échelonnent à leur tour de la forêt dense ombrophile au désert absolu (figure 1.5). D'une manière générale, les principales formations sont :

- Les formations forestières fermées, dont fait partie la forêt ombrophile ou sempervirente ;
- les formations mixtes (forestières-graminéennes) ou graminéennes, dont font partie les différents types de savanes (boisée, arborée, arbustive, épineuse, herbacée, graminéenne).

Deux principaux écosystèmes prédominent donc en Afrique, la forêt et la savane.

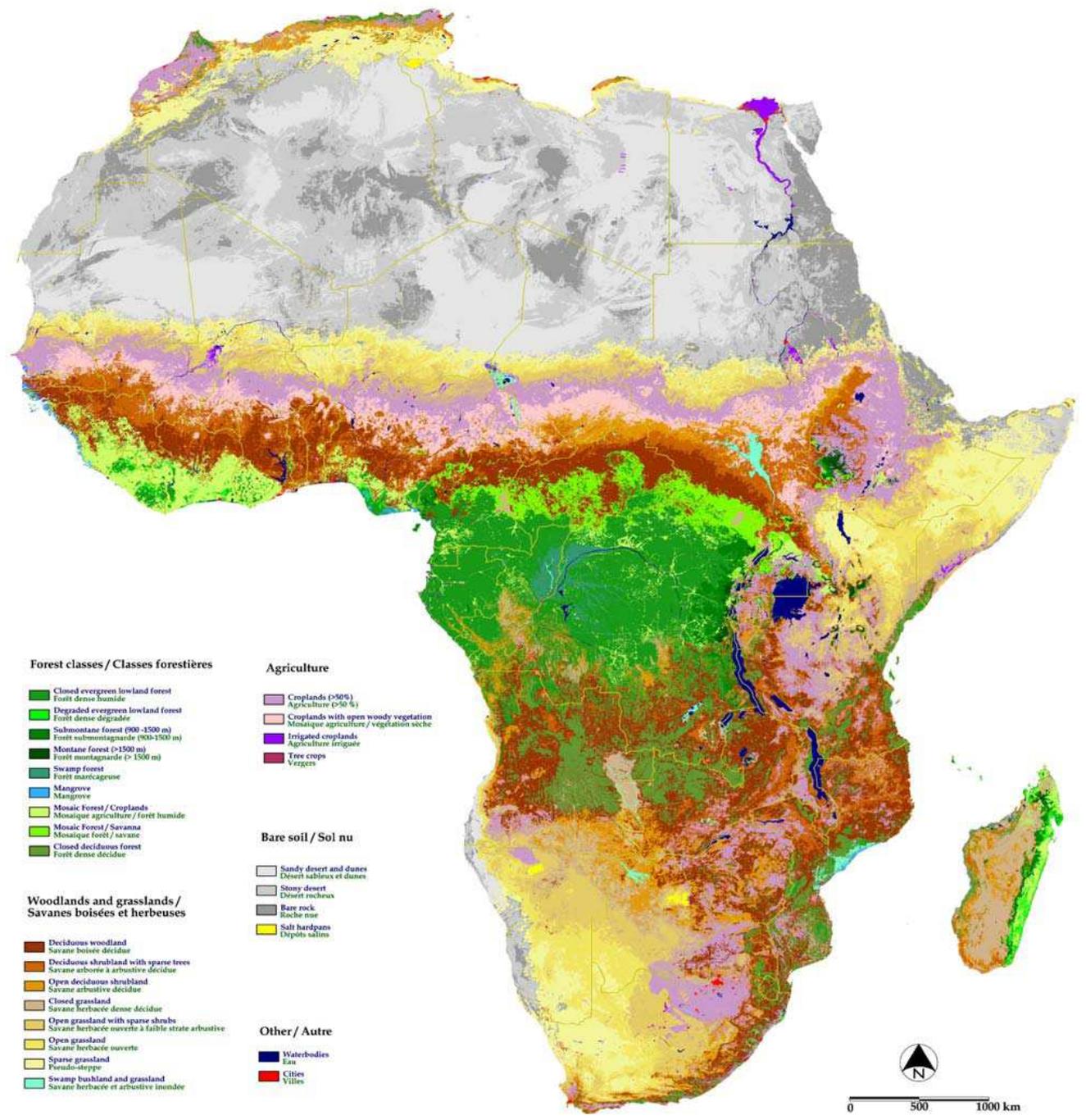


Figure 1.5 : Carte d'occupation du sol de l'Afrique (GLC, 2000) (Mayaux et al., 2004).

1.2.2.1. La forêt

La forêt équatoriale humide présente un milieu homogène dont 90% se situe en Afrique Centrale, centré sur le bassin du Congo. Cette forêt est de nature sempervirente, c'est-à-dire que son feuillage ne se renouvelle pas selon un rythme saisonnier, et qu'elle apparaît ainsi toujours verte. La végétation de ces forêts, très variée, se présente souvent sous la forme de quatre strates nettement marquées, auxquelles on peut ajouter quelques lianes et de nombreuses épiphytes :

- une strate supérieure constituée d'arbres de 35 à 40 m dispersés (émergents) ;
- une strate plus basse et plus dense d'arbres de 20 à 28 m, qui forme une voûte quasi continue, les troncs se ramifiant surtout dans le tiers ou le quart supérieur ;
- une strate arborescente à feuillage peu dense ;
- une strate herbacée discontinue et dense.

Compte tenu de l'indice foliaire élevé, les conditions d'éclairement sont faibles au niveau du sol, de l'ordre de 10% du flux de lumière reçu au sommet de la forêt.

La forêt équatoriale est portée en grande partie par des ferralsols (sols ferrallitiques) de différents types (orthiques, xantiques, rhodiques, plinithiques, FAO-UNESCO 1977). Ces sols sont souvent très altérés. Le lessivage des bases échangeables et l'oxydation de l'alumine et oxydes de fer rendent ces sols acides d'une fertilité limitée malgré un taux d'argile appréciable. Les 10% de forêt équatoriale humide que l'on trouve en Afrique de l'Ouest sont associés, en plus des ferralsols, à des acrisols (Ghana, Côte d'Ivoire) et à des nitrosols (Nigeria).

1.2.2.2. La savane

Les déplacements saisonniers de la ZCIT suivant l'axe nord-sud déterminent des zones climatiques et par la même de grandes zones de végétation qui, en Afrique de l'Ouest, sont disposées en bandes approximativement parallèles à l'équateur (voir figure 1.5). L'évolution des paramètres climatiques, depuis le sud de la zone guinéenne jusqu'au nord de la zone sahélienne, est marquée par le passage d'un régime à deux saisons des pluies à une seule saison pluvieuse, par la réduction de la période végétative effective et par l'accentuation des caractères de la saison sèche : longueur et degrés de siccité. Différents types de savanes existent le long de ce gradient d'aridité (Menaut, 1983) :

-Au sud, au contact de la forêt tropicale, les savanes guinéennes où prédominent des plantes pérennes, essentiellement des graminées C4 pour la strate herbacée. Les savanes guinéennes

sont caractérisées de **savane humide** avec une strate herbacée dense et haute, dominée par une strate arborée éparses. 60 à 80% de leur surface sont brûlés chaque année (Menaut et al., 1991) et la repousse a lieu très tôt après le passage du feu (généralement en janvier). La période végétative s'étale presque sur toute l'année.

-Plus au nord, le domaine soudanien où les graminées pérennes dominent encore la strate herbacée. Des îlots de forêt dense sèche peuvent exister dans le secteur soudano-guinéen. Le cycle végétatif se raccourcit vers le nord, parallèlement à l'accentuation de la rigueur de la saison sèche. Selon Menaut et al. (1991), la savane sud-soudanienne ou soudano-guinéenne est aussi caractérisée de **savane humide** avec une densité d'arbres plus importante et une strate herbacée moins dense. 50% de cette biomasse seraient soumis au feu annuellement. Les savanes nord-soudanienne dont 25% sont soumis au feu chaque année et les savanes soudano-sahéliennes qui ne sont qu'accidentellement touchées par le feu sont caractérisées de **savane de type intermédiaire** et représente la moitié de la surface totale des savanes. Elle est à haute strate herbacée. Les savanes d'Afrique du Sud du domaine phytogéographique soudano-zambien font partie des savanes intermédiaires proches du type nord-soudanien.

-Dans la zone sahélienne, les plantes annuelles, essentiellement des graminées, forment un tapis discontinu. Dans **les savanes sèches** de ces régions, souvent d'allure steppique, le cycle végétatif est court avec une strate herbacée basse et épineuse, laissant par endroit des zones de sable dénudé. Après une ou plusieurs vagues de germination (de mai à juillet suivant les années), la floraison rapide est suivie d'un phénomène de sénescence et de dessèchement. Dans les régions septentrionales, le feu se propage mal au travers de maigre tapis herbacé discontinu. Au Sahel, le surpâturage constitue le principal facteur de perturbation de l'écosystème. Ces savanes représentent 10% de la surface totale de savane et comprennent le nord du Sahel et les déserts du Kalahari et du Botswana.

En résumé, le gradient physiologique suit en première approximation le gradient climatique : la hauteur, la phytomasse et le recouvrement de la strate herbacée diminuant avec le total des précipitations (Bourlière et Hadley, 1983). Tous les milieux décrits précédemment sont apparentés et réunis sous le terme de savane : ce sont des écosystèmes tropicaux et subtropicaux à saisonnalité marquée, dans lesquels la végétation consiste en un couvert herbacé continu (généralement de graminées de types C4), souvent associé à un couvert arbustif ou arboré discontinu (Frost et al., 1986 ; Scholes and Archer, 1997). Cette définition s'applique

bien aux savanes humides où les précipitations, bien réparties sur la plus grande partie de l'année, permettent un bon développement de la strate herbacée. Mais en conditions semi-arides où la période sèche est dominante durant l'année, la strate herbacée n'est plus continue et laisse place à de nombreuses taches de sol nu.

1.3. Emissions des gaz traces dans les écosystèmes africains

En Afrique, les sources majeures de gaz traces atmosphériques sont les feux de biomasse et les émissions naturelles (par les sols et la végétation). A ces deux sources s'ajoutent les éclairs, source de NO_x en altitude, et les émissions anthropiques liées au trafic. Dans les principaux écosystèmes, en milieux ruraux, les composés mineurs atmosphériques (ou gaz en trace) sont principalement émis par les sols et la végétation, y compris lors de la combustion de celle-ci.

1.3.1. Emissions liées aux feux de biomasse

En Afrique, les feux de végétation jouent un rôle central dans la chimie de l'atmosphère tropicale et subtropicale et, selon Lacaux et al. (1993), représentent 57% du total des combustions de biomasse en zone tropicale (49% des feux de savane et de 8% des incendies de forêt). Les feux de savane sont responsables de plus de 90% de la biomasse totale brûlée en Afrique, contrairement à ce qui se passe en Amérique du Sud et Asie du Sud, où les incendies de forêt sont plus importants (Delmas et al., 1991). Les feux de biomasse ont lieu en Afrique durant les saisons sèches (figure 1.6), de mi-Novembre à Mars dans l'hémisphère Nord, de mi-Juin à Octobre dans l'hémisphère Sud (Hao et Liu, 1994 ; Marengo et al., 1990 ; Giglio et al., 2006 ; Ito et al., 2007). Les processus responsables d'émissions de composés liés à la combustion de biomasse sont :

- les feux de brousse pendant la saison sèche pour nettoyer la savane et renouveler les pâturages. Plus de 70% des zones de savanes africaines sont potentiellement soumises au feu chaque année (Delmas et al., 2005).
- la déforestation ou défrichage pour l'extension de l'agriculture ; elle est fréquente dans les zones forestières et les savanes humides qui sont appropriées à l'exploitation agricole.
- l'utilisation intensive du bois ou du charbon de bois comme source d'énergie (cuisine, chauffage...).

L'ensemble de ces feux constitue une source importante de gaz traces et de particules en suspension libérés dans l'atmosphère, ainsi ils ont un impact important dans les

changements globaux, notamment en termes d'émissions atmosphériques de gaz à effet de serre (Lioussé et al., 1996). L'intensité des émissions liées aux feux dépend notamment de la quantité de biomasse brûlée : elle est maximale pour la savane guinéenne (ou humide) et minimale pour la savane sahélienne.

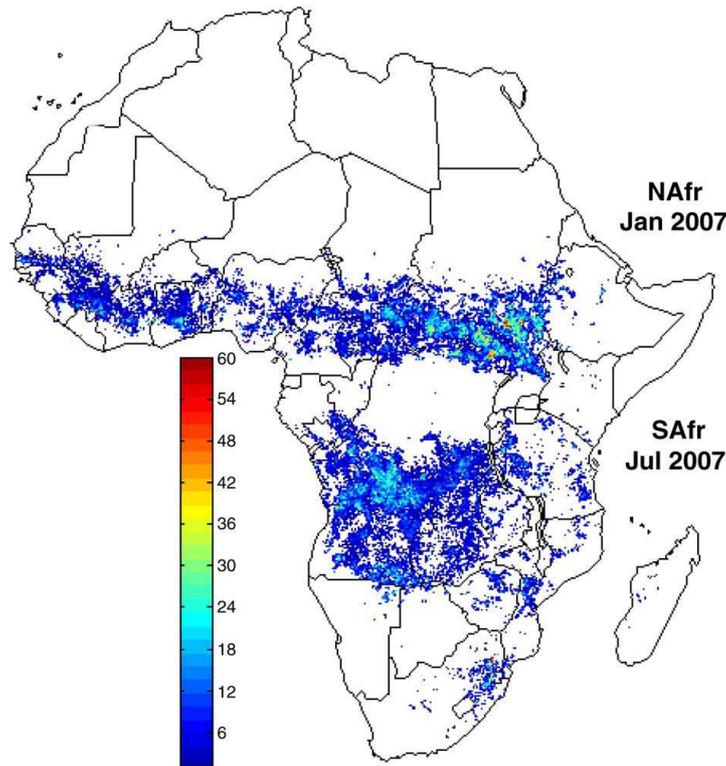


Figure 1.6 : Pixels de feux au-dessus (des fenêtres) de l'Afrique du Nord (NAfr) et de l'Afrique du Sud (SAfr) respectivement en janvier et juillet 2007. La barre en couleur indique pour chaque pixel de feu le nombre de feux actifs identifiés. (source : Amraoui et al., 2010).

Les principaux produits de feux de biomasse qui nous intéressent dans cette étude sont : NO_x , NH_3 , SO_2 et indirectement O_3 à travers ses précurseurs (CO , CH_4 , COV). L'azote initialement présent dans la biomasse brûlée est volatilisé sous forme de NO , NO_2 , N_2O , NH_3 , HCN et de nitrates et nitrites organiques et en majeure partie (60 à 70%) sous forme d'azote moléculaire N_2 (Crutzen et Andreae, 1990 ; Crutzen et al., 1990, Kulbusch et al., 1991). On peut aussi observer des émissions de NO_3^- et NH_4^+ particulières (Andreae et al., 1988; Lacaux et al., 1993). Les composés du soufre SO_2 et OCS proviennent des amino-acides soufrés protéiniques, qui constituent 50 à 90% de la teneur en soufre de la plante (Turnet et Lambert, 1980). Le reste du soufre se trouve sous forme de sulfate, dont la majeure partie s'incorpore aux cendres, une faible partie est émise sous forme particulaire. Les feux de biomasse

contribuent en grande partie aux émissions globales de CO, COV et NO_x (les précurseurs d'ozone). Les fumées des feux de biomasse peuvent être transportées loin des sources et essentiellement au dessus de l'océan Atlantique pour ce qui concerne les feux d'Afrique de l'Ouest. Dans ces panaches de fumées, de fortes concentrations d'ozone ont été observées. Les travaux de Marufu et al. (2000) suggèrent que l'Afrique est la région du monde où les émissions des feux de biomasse affecte le plus l'ozone troposphérique à l'échelle globale. L'analyse des données MOZAIIC récoltées au dessus des aéroports du Golfe de Guinée (Sauvage et al., 2005) montre que la concentration d'ozone est maximum durant la saison sèche avec des valeurs maximales entre 60 et 80 ppb vers 750-700 hPa. Ces maxima d'ozone sont liés au transport par le flux d'Harmattan des émissions issues des feux de biomasse. En ce qui concerne les oxydes d'azote (NO_x), les feux de biomasse en Afrique rejettent entre 2 et 7,6 Tg(N) par an (Crutzen et Andreae, 1990 ; Andreae, 1988). Ces émissions sont l'équivalent de 10 à 30% de celles de NO issues de combustibles fossiles, et elles sont comparables aux émissions biogéniques par les sols (5 à 15 TgN/an). Jaeglé et al. (2004) ont aussi montré que les émissions des NO_x issues des combustions de biomasse (3,8 TgN/an) sont comparables à celles issues des sols (3,3 TgN/an) à l'échelle de l'ensemble du continent africain.

La variabilité interannuelle des feux est grande et diffère selon les types de brûlage. En effet, la quantité de biomasse brûlée dépend non seulement du type de végétation et de la quantité de matière brûlée mais aussi de facteurs météorologiques tels que les sécheresses intenses, et les activités humaines.

Dans la plupart des inventaires globaux et régionaux (Hao et Liu, 1994 ; GEIA ; EDGAR ; Liousse et al., 1996 ; Cooke et Wilson, 1996 ; Van der Werf et al., 2006, 2008 ; Liousse et al., 2010 ; Mieville et al., 2010), la construction des inventaires de feux de biomasse est basée sur une approche « bottom-up », selon la formule générale :

$$E(X) = M * EF(X)$$

Avec E, les émissions de gaz ou aérosols (en g), M, la quantité de biomasse brûlée (en kg) et EF, le facteur d'émission de l'espèce X (en g/kg de matière sèche) dont on calcule les émissions.

De nombreuses incertitudes subsistent encore sur le calcul de telles émissions (Liousse et al., 2010 ; Mieville et al., 2010), et c'est en Afrique que les écarts sont les moindres (Mieville et al., 2010). Pour les facteurs d'émissions, de nombreuses études expérimentales ont fourni des valeurs de facteurs d'émissions selon le type de végétation brûlée (Michel et al., 2005 ;

Lioussé et al., 2004 ; Andreae and Merlet, 2001). Cependant, certains écosystèmes demeurent encore peu caractérisés (par exemple, la végétation méditerranéenne). Des études d'inter-comparaisons entre plusieurs inventaires ont eu lieu ces 3 dernières années (Granier et al., 2010 ; Stroppiana et al., 2010, Tummon et al., 2010) pour tester les incertitudes liées à la détermination de quantité de biomasse brûlée (M). La quantité de biomasse est calculée en tenant compte de la surface brûlée (A), de la densité de biomasse (B), de la fraction de biomasse au-dessus de la surface du sol (α) et de l'efficacité de brûlage (β), selon la relation :

$$M = A * B * \alpha * \beta$$

L'estimation du paramètre A (surface brûlée) a été améliorée dans les années 1995 par l'utilisation de données satellites, qualitativement à l'aide de cartes de pixels de feux issues des données des radiomètres ATSR (ESA) et AVHRR (Advanced Very High Resolution Radiometer) (Cooke et al., 1996), puis quantitativement par l'utilisation des cartes de surfaces brûlées (Ito and Penner, 2005 ; Michel et al., 2005, Boschetti et al., 2004 ; Hyer et Reid, 2009).

Le choix du paramètre B (densité de biomasse) est également sources d'incertitudes, peu de mesures étant disponibles. Généralement on a recours à des cartes de classes de végétation et à leur paramètres associés (densité de biomasse, efficacité de brûlage...), comme par exemple les cartes UMD (Hansen et al., 2000) et GLC2000 (Bartholomé and Belward, 2005). Il existe une autre approche (Van der Werf et al., 2006) qui utilise le concept de végétation dynamique pour réduire les incertitudes. Des études d'inter-comparaison sont en cours pour évaluer (ou comparer) les deux approches. Enfin, une nouvelle approche, encore en cours de développement, permet de réduire les incertitudes sur la détermination des quantités de biomasse brûlée à partir des données satellites de FRP (Fire Radiative Power). Cette dernière fournit une information sur l'activité des grands feux visibles par satellite, directement corrélée à la quantité de biomasse brûlée (Roberts et al., 2005 ; Wooster et al., 2005).

Notons que pour l'Afrique, il a été montré par différentes études de modélisation, utilisant les données d'entrée des différents inventaires des feux de biomasse, que l'inventaire AMMABB (AMMA Biomass Burning) développé à partir des données L3JRC et de la carte GLC pour les années 2000-2006 (Lioussé et al., 2010) donnait des résultats satisfaisants par rapport à d'autres inventaires existants (Tummon et al., 2010 ; Barret et al., 2010 ; Jason et al., 2010 ; Lioussé et al., 2010).

Dans le chapitre 5 de ce manuscrit, pour le bilan émission-dépôt de l'azote atmosphérique, nous allons calculer les émissions de NO_x et de NH_3 par les combustions de

biomasse à partir des données satellites des surfaces brûlées (L3JRC) (Lioussé et al., 2010), dérivées des données du capteur végétation SPOT-VGT et de la carte de végétation GLC (Global Land Cover).

1.3.2. Emissions biogéniques

Dans les écosystèmes, les émissions biogéniques (gaz produits lors de processus biologiques) sont issues soit directement de la végétation, soit des sols à la suite de la dégradation de la matière organique.

En forêt :

Les émissions de la forêt sont dues aux émissions par la végétation vivante, à la décomposition bactérienne de la matière végétale morte et aux transformations biologiques dans les sols.

L'émission des composés gazeux de l'azote (NO_x , NH_3 , ...) par les sols et la litière en forêt résulte du cycle complexe des transformations biologiques de l'azote (figure 1.1) : l'azote, présent dans les sols et la litière sous forme organique, subit une minéralisation biologique dont les étapes sont l'ammonification (formation d'ions NH_4^+) favorisée par l'humidité élevée des sols qui réduit l'aération, puis la nitrification (formation d'ions NO_3^-) (Domerges et Mangenot, 1970). Serça et al. (1994) avaient indiqué que le processus chimique de dénitrification (dismutation de HNO_2) est le processus majeur d'émission naturelle de NO sur ces sols de nature ferrallitique acide. L'intensité de l'émission des sols est liée à la nature et à l'état hydrique des sols qui déterminent les conditions d'anaérobiose et influent sur le potentiel d'oxydoréduction du sol. La dégradation très rapide de la matière organique sous l'action de la microfaune du sol et l'activité bactérienne favorisée par les conditions climatiques expliquent les quantités importantes de gaz émis par le sol. La pluviométrie, qui influe fortement sur la décomposition de la litière, joue un rôle essentiel dans l'intensité de cette source (Yoboué, 1991).

En plus des composés azotés, la forêt constitue également une source significative de composés soufrés et d'acides organiques par les sols et la végétation. L'émission de composés du soufre par la biosphère en zone de forêt résulte aussi de la décomposition bactérienne de la matière organique. Des bactéries spécifiques, utilisant les sulfates comme accepteurs d'électrons, réduisent en sulfures les sulfates produits par la minéralisation de la matière organique. Ce processus n'intervient que dans les milieux en anaérobiose stricte. La forêt

tropicale constitue aussi la plus grande source des émissions de composés organiques volatils (COV) d'origine biogénique (isoprènes, monoterpènes...).

La forêt équatoriale présente un écosystème relativement homogène comparativement aux savanes. Elle se situe dans la zone de plus forte pluviométrie à l'échelle de l'Afrique. Les flux émis (de façon naturelle) apparaissent, en moyenne, supérieurs à ceux observés en zone de savane. Cependant, les caractéristiques pluviométriques de l'écosystème forêt limitent la propagation des produits émis localement. Ces derniers sont redéposés au sol par les pluies qui ont lieu quasi quotidiennement en région de forêt équatoriale africaine au cours des trois quarts de l'année. De plus, la densité de la canopée limite considérablement les émissions vers l'atmosphère, puisque l'essentiel des NO_x , provenant des émissions de NO par les sols, est capté par la végétation sous forme de NO_2 : c'est le facteur de réduction de la canopée (CRF, Canopy Reduction Factor, en anglais).

En savane :

A côté de l'émission sporadique des feux de savane, l'activité biologique dans les sols donne lieu à une émission continue. Les émissions biogéniques par les sols dépendent fortement de leurs caractéristiques écologiques et des conditions météorologiques générales. Elles présentent donc une forte variabilité en fonction du type de savane (sèche ou humide) et de la saison (sèche ou humide).

Le processus prépondérant d'émission de NO jusqu'à présent mis en évidence sur ces sols, est la nitrification bactérienne qui a lieu dans les conditions d'aérobie et de pH alcalin ou peu acide. L'intensité des émissions de NO_x par les sols peut varier fortement en quelques jours par une forte et brève augmentation des émissions suite à un épisode de pluie sur un sol sec (Gasche and Papen, 1999 ; Johansson et al., 1988 ; Yienger and Levy, 1995) ; c'est le phénomène d'effet « *pulse* (en anglais) ». Durant la campagne AMMA, des émissions de NO sous forme de grandes bouffées (*pulses*) ont été observées sur les sols du Sahel ouest africain fraîchement humidifiés après une grande période de sécheresse (Stewart et al., 2008 ; Delon et al., 2008, et références dans cet article). En utilisant des données satellites, Jaeglé et al. (2004) ont montré que ces émissions de NO par les sols humidifiés peuvent augmenter de façon significative les concentrations de NO_x en Afrique de l'Ouest. Aussi des études faites dans le cadre de AMMA (Stewart et al., 2008) ont relié ces bouffées de NO par les sols humides à des augmentations de PAN et d'ozone durant la mousson de l'Afrique de l'Ouest. Dans les sols de savane, les transformations biologiques de l'azote conduisent aussi à l'émission de composés gazeux tels que NH_3 , N_2O . Par exemple, dans les régions aride et

semi-aride où les sols sont souvent alcalins, l'apport de fertilisants ammoniacaux sur les sols agricoles provoque une émission prépondérante de l'ammoniac atmosphérique (NH_3) (Schlesinger et Hartley, 1992). En savane sèche, zone agropastorale, l'essentiel de la production d'ammoniac atmosphérique résulte de la décomposition enzymatique de l'urée des lisiers et de la décomposition d'autres déchets issus de l'élevage.

Les émissions de composés soufrés, comme par exemple le dioxyde de soufre (SO_2), sont sans doute négligeables dans la mesure où les conditions d'aérobiose sont présentes dans les sols (Delmas, 1980).

Les composés émis par la végétation en zone de savane vont provenir essentiellement de la savane guinéenne arborée qui entourent la forêt équatoriale et dont la densité de biomasse est la plus élevée.

Si l'on se reporte à la circulation atmosphérique (paragraphe 1.2.1), l'Afrique de l'Ouest et l'Afrique Centrale, dans leur ensemble, sont soumises en permanence à l'influence des flux d'air continental qui souffle du secteur Nord-Est et du flux d'air océanique qui souffle du secteur Sud-Ouest. Les masses d'air survolant les zones de savanes arrivent donc au-dessus des zones de forêt. Les émissions provenant des savanes, et en particulier celles liées aux feux, sont alors susceptibles de réagir avec les composés émis toute l'année par les forêts.

1.4. Conclusion

Différents travaux ont été déjà faits sur les composés gazeux (et particulaires) atmosphériques en Afrique Occidentale et Centrale (Yoboué, 1991 ; Serça et al., 1994 ; Al-Ourabi, 2002 ; Jaeglé et al., 2004 ; ...). Ces travaux ont mis en évidence l'importance des différentes sources naturelles et anthropiques, plus particulièrement la source biogénique des écosystèmes (forêt et savane) et la combustion de biomasse. Les principales sources des composés azotés (NO et NH_3) en savane sèche comprennent les émissions des sols et l'élevage, qui est la plus importante source d'ammoniac (NH_3). En savane humide, les émissions principales sont dues aux feux de savanes (car la végétation y est plus dense) et aux sols. Pour l'écosystème forêt, la source majeure provient des émissions des sols et de la végétation, y compris la combustion de celle-ci. L'acide nitrique (HNO_3) est produit essentiellement par oxydation du dioxyde d'azote (NO_2) dans l'atmosphère. La combustion de biomasse constitue aussi une source importante du dioxyde de soufre (SO_2) dans les écosystèmes africains. D'autres sources de SO_2 incluent les émissions de composés soufrés

par le sol et la biosphère mais les quantités émises sont en générale faibles. La source de l'ozone (O_3) est la production photochimique dans la troposphère et sa production nette résulte de l'oxydation du monoxyde de carbone (CO) et des hydrocarbures (RH), en présence d'oxydes d'azote. La relation entre l'ozone et ses précurseurs (d'origines naturelles et anthropiques) ne sont pas linéaires. La combustion de biomasse et les émissions biogéniques des sols et de la végétation constituent les sources majeures des précurseurs de l'ozone dans les principaux écosystèmes africains.

Chapitre 2 :

Approche expérimentale de mesure des concentrations des gaz et méthode de calcul des flux de dépôt sec.

Sommaire

2.1. Caractéristiques et description des sites de mesure du réseau IDAF.....	37
2.1.1. Les sites en savane sèche	41
2.1.2. Les sites en savane humide	42
2.1.3. Les sites en forêt.....	43
2.2. Approche expérimentale : collecte et analyse des échantillons de gaz	44
2.2.1. Technique de mesure des gaz : capteur passif.....	44
2.2.2. Technique d'analyse des capteurs passifs : la chromatographie ionique.....	52
2.2.3. Validation des résultats : mesures et analyses.....	54
2.3. Méthode de calcul des flux de dépôt sec : méthode inférentielle (<i>inferential method</i>)	
.....	57
2.3.1. Généralité sur le dépôt sec	58
2.3.2. Notion de couche limite de surface	59
2.3.3. Paramétrisation de la vitesse de dépôt sec	60
2.3.4. Présentation du modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b)	63
2.4. Conclusion.....	74

Mes travaux de thèse présentent la caractérisation des niveaux de concentration des gaz représentatifs des principaux écosystèmes africains. Un modèle de dépôt sec a été utilisé afin d'estimer les flux de dépôt sec gazeux dans ces écosystèmes par la méthode inférentielle. Ce chapitre présente le réseau de mesures et le programme dans lequel s'inscrit ce travail, l'ensemble des techniques et des protocoles pour la mesure des gaz ainsi que la description du modèle inférentiel de dépôt sec.

2.1. Caractéristiques et description des sites de mesure du réseau IDAF

Les travaux présentés dans cette étude ont été réalisés dans le cadre du réseau IDAF, composante africaine du réseau international de chimie atmosphérique DEBITS/IGAC. Le service d'observation IDAF (**IGAC-DEBITS-AFRIQUE**) labellisé SO/ORE est opérationnel depuis 1995. Il a pour objectif d'étudier l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère et des dépôts en Afrique. Le réseau IDAF possède actuellement 10 sites sur tout le continent africain dont 7 en Afrique de l'Ouest et Centrale coordonnés par le Laboratoire d'Aérologie (Toulouse) et 3 en Afrique du Sud coordonnés par la « North West University » de Potchefstroom. Chaque site a été choisi pour être représentatif à l'échelle régionale d'un grand écosystème africain avec ses propres caractéristiques en termes de sources d'émissions et de sa sensibilité aux changements climatiques, écologiques et anthropiques. Ainsi, les stations sont associées par paire (ou par trois) et réparties sur des bandes de latitude pour représenter :

- les écosystèmes de savanes sèches : 1 site au Niger (Banizoumbou), 2 sites au Mali (Katibougou et Agoufou) ;
 - les écosystèmes de savanes humides : 1 site en Côte d'Ivoire (Lamto), 1 au Bénin (Djougou)
 - les écosystèmes de forêts : 1 site au Cameroun (Zoétélé), 1 au Congo (Bomassa) (figure 2.1).
- Les 3 sites IDAF d'Afrique du Sud sont : Cape Point (site côtier), Amersfoort (savane sèche influencée par les activités anthropiques) et Louis Trischart (savane sèche).

La représentativité recherchée est celle d'écosystèmes non perturbés (ruraux) dominés par des sources d'émission de gaz ou de particules atmosphériques caractéristiques (émissions biogéniques, poussières, feux de biomasse, animaux...). Ces stations sont toutes équipées d'un collecteur automatique de pluie (pour le dépôt humide), d'un collecteur d'aérosols, et de capteur passifs de gaz (NO_2 , NH_3 , HNO_3 , SO_2 et O_3). Les stations IDAF dont les caractéristiques géographiques et écologiques sont résumées dans le tableau 1.1, forment un transect d'étude savane sèche-savane humide-forêt en Afrique de l'Ouest et Centrale. La

détermination des saisons pour chaque site et écosystème est indispensable pour l'étude des concentrations des gaz.

Les pluviométries mensuelles moyennées sur la période d'étude (en général, 1998-2007) pour chaque station d'Afrique de l'Ouest et Centrale sont présentées sur la figure 2.2.

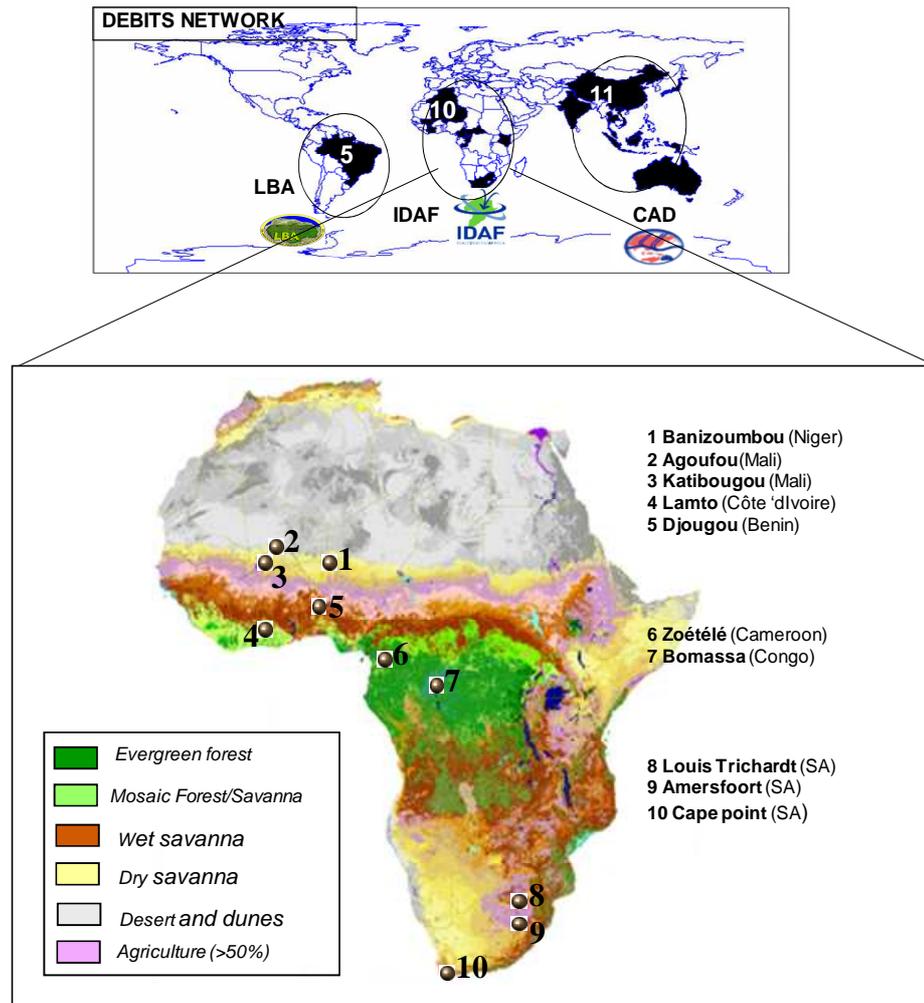


Figure 2.1 : IDAF, composante africaine du réseau international DEBITS incluant 26 sites. (Asie: CAD Composition of Asian Deposition, et en Amérique du Sud : LBA The Large Scale Biosphere Atmosphere Experiment in Amazonia). Localisation des 10 stations IDAF sur la carte de végétation de l'Afrique éditée en 2000 (P. Mayaux et al, JRC Ispra, 2004).

Tableau 2.1 : Caractéristiques géographiques et écologiques des stations IDAF d’Afrique de l’Ouest et Centrale.

Ecosystème	Station	Latitude	Longitude	Elevation/m	Pays
Savanes sèches	Banizoumbou	13°31’N	02°38’E	220	Niger
	Katibougou	12°56’N	07°32’W	290	Mali
	Agoufou	15°20’N	01°29’W	300	Mali
Savanes humides	Lamto	06°13’N	05°02’W	105	Côte d’Ivoire
	Djougou	09°39’N	01°44’E	430	Benin
Forêts	Zoétéélé	03°15’N	11°53’E	720	Cameroun
	Bomassa	02°12’N	16°20’E	350	Congo

Tableau 2.2: Détermination des saisons sèches et humides dans les stations IDAF pour la période 1998-2007 avec le cumul des précipitations saisonnières (mm) et annuelles (mm).

Station	Jan	Fév	Mar	Avr	Mai	Juin	Juil	Août	Sep	Oct	Nov	Déc	Total
Banizoumbou	38					451				8			497
Katibougou	64					706				43			814
Agoufou	18					329				11			358
Lamto	188			979						110			1277
Djougou	55			1148						2			1205
Zoétéélé	70		1508								17		1595
Bomassa	52		1481								55		1588

Saison sèche

Saison humide

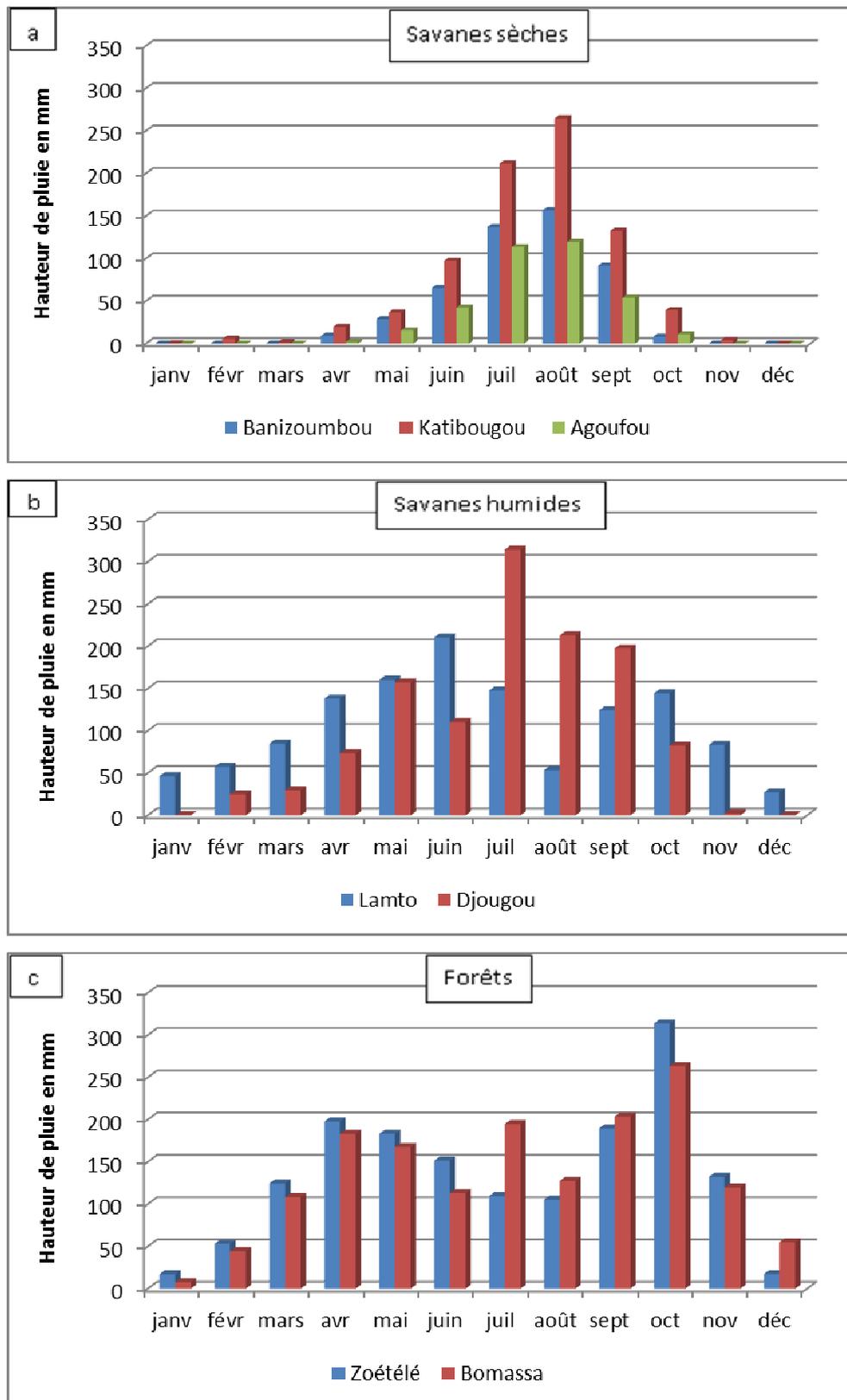


Figure 2.2 : Pluviométrie mensuelle moyennée sur la période d'étude (1998-2007) pour les sites IDAF sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (b) en Afrique de l'Ouest et Centrale.

En tenant compte de la position de la ZCIT et des données de la pluviométrie mensuelle, nous avons déterminé globalement les saisons sèches et humides pour chaque site étudié (tableau 2.2). Ce tableau (2.2) indique aussi le cumul saisonnier et annuel de précipitations de chaque site de mesure.

2.1.1. Les sites en savane sèche

- **La station Banizoumbou au Niger** : Sur le plan écologique, le Niger comprend quatre zones climatiques : saharienne au Nord, sub-saharienne au Centre, sahélienne à prédominance pastorale au Centre-Sud et soudanienne à vocation agricole au Sud. Banizoumbou est un village rural situé au Sud-Ouest du Niger et à 65 km à l'Est de Niamey dans la partie sahélienne du Niger. L'élevage et l'agriculture constituent les principales activités de ses habitants. La station IDAF de Banizoumbou se trouve localisée sur un site composé de plateaux disséminés et de larges vallées. Cette station est représentative du Sahel. La région de Banizoumbou possède un climat semi-aride avec une saison sèche d'Octobre à Mai (soit 8 mois) et une saison humide de Juin à Septembre, avec Mai comme mois de transition entre les deux saisons. La pluviométrie annuelle varie de 402 à 699 mm avec une pluviométrie moyenne de 486 mm sur les dix ans de la période d'étude (1998-2007).

- **La station Katibougou au Mali** : Il existe trois zones climatiques au Mali, selon l'influence plus ou moins prononcée de la mousson. Il s'agit, du nord au sud, des zones saharienne, sahélienne et soudanienne qui ont chacune leur propre écosystème.

La station IDAF de Katibougou au Mali est située à 60 km au Nord-Est de Bamako au sein de la station météorologique de Koulikoro. Dans le cadre du programme DEBITS/IDAF, cette station est représentative d'un écosystème non perturbé de la zone soudano-sahélienne (nord-soudanienne). La pluviométrie annuelle varie de 585 à 1039 mm avec une pluviométrie moyenne annuelle de 797 mm sur la période d'étude (1998-2007). Comme Banizoumbou, la saison sèche s'étend aussi sur 8 mois à Katibougou, d'Octobre à Mai mais les pluies en saison humide (juin-septembre) sont plus importantes comparées aux autres stations de la savane sèche (figure 2.2). Le mois de Mai représente le mois de transition entre les deux saisons.

- **La station Agoufou au Mali** : Agoufou fait partie du site d'observation méso échelle du Gourma malien (14°5'N-17°5'N / 2°W-1°W) dans le programme AMMA-CATCH (African Monsoon Multidisciplinary Analysis - Couplage de l'Atmosphère Tropicale et du Cycle Hydrologique). Le site IDAF d'Agoufou a été initié dans le cadre des observations long

terme (LOP) du programme AMMA en 2005. Cette région d'expérience est située vers la limite nord de la zone atteinte par la mousson ouest-africaine, dans la partie sahélienne du Mali. Les pluies y sont donc moins abondantes en saison humide (Juin à Septembre). Juin représente le mois de transition entre les deux saisons (sèche et humide). La précipitation moyenne annuelle sur la période de 2005-2007 est 348 mm. Une description bien détaillée de la station peut être trouvée dans Mougin et al. (2009).

2.1.2. Les sites en savane humide

- **La station Lamto en Côte d'Ivoire :** La réserve naturelle de Lamto est située à environ 160 km au nord d'Abidjan. Cette localisation (6°13'N, 5° 02' W) correspond au sud du « V-Baoulé », une zone de savane qui s'étend vers le sud dans la zone de forêt. La réserve s'étend sur 2500 ha et correspond aux savanes de type guinéen. La végétation de la station de Lamto est constituée d'une mosaïque de savanes séparées par des forêts-galeries dans les bas-fonds (Menaut et César, 1979 ; Gautier 1990). On y distingue différents faciès de savanes guinéennes : savanes boisées, savanes arbustives, savanes herbeuses, forêts-galeries. Les faciès arbustifs ouverts et moyennement ouverts occupent les trois quarts de la zone à savane arbustive à Andropogonées qui recouvre près de la moitié des savanes de la réserve de Lamto (Le Roux, 1995 ; Le Roux et al., 1997). La strate herbacée se compose essentiellement de graminées pérennes (plantes C4) atteignant près de 2 m de hauteur à la floraison. Le passage du feu, généralement mi-janvier, détruit la phytomasse épigée. La repousse des herbes et le débouillage des arbustes ont lieu dans le mois qui suit. Lamto se trouve dans une région climatologique frontière entre les zones climatiques du Sud (zone forestière) et du Centre (savane forestière), ce qui lui confère un climat de savane, chaud et pluvieux. La pluviométrie annuelle varie de 1054 à 1549 mm sur la période d'étude (1998-2007) avec une moyenne annuelle de 1269 mm. La saison humide s'étend d'Avril à Octobre et la saison sèche de Novembre à Mars. Le mois d'Août représente l'intra saison.

- **La station Djougou au Bénin :** Elle est située au nord du Bénin, à 450 km de Cotonou. Le site de Djougou est l'un des (trois) sites méso échelle d'étude d'AMMA (le site d'Ouémé). Ce nouveau site IDAF a aussi été initié dans le cadre de la période d'observation long terme (LOP) d'AMMA en 2005. Il est situé dans une clairière entourée de forêts secondaires, d'espèces cultivées et de terres en jachère, et qui a été soumise à un brûlage (ou combustion) de végétation à petite échelle au cours des cinq dernières années. Le site IDAF de Djougou se situe dans la zone de végétation soudanienne sud, caractérisée par la savane

boisée. Le climat est de type soudano-guinéen avec deux saisons : une saison pluvieuse s'étendant d'Avril à Octobre, soit environ six mois de pluie et d'une saison sèche allant de la mi-octobre à la mi-avril. La pluviométrie moyenne annuelle est de 1205 mm sur la période 2005-2007.

2.1.3. Les sites en forêt

- **La station Zoétélé au Cameroun :** Nsimi est un petit village de l'arrondissement de Zoétélé dans le Sud-Cameroun et est représentatif de l'écosystème forestier équatorial. La station IDAF de Zoétélé est située à 120 km au Sud-Est de Yaoundé. Le site de Zoétélé/Nsimi est dans le bassin fluvial du Nyong, fleuve qui, avec la Sanaga et le Ntem, irrigue la partie occidentale du plateau sud camerounais d'altitude comprise entre 600 et 900 m, parsemé de quelques massifs montagneux pouvant atteindre par endroit 1300 m. L'agriculture reste l'activité régionale dominante. Pour la mise en culture des produits agricoles, de vastes forêts sont soit défrichées, soit brûlées. Le site de Zoétélé/Nsimi est situé au sein du domaine climatique équatorial. La répartition des saisons y résulte globalement du mouvement des masses d'air atmosphériques qui se fait sous l'action des alizés (boréal et austral). En plus de cette alternance des deux masses d'air (harmattan et mousson), la zone d'étude (le bassin du fleuve Congo) subit également l'influence des masses d'air de l'océan Indien. A ces masses d'air s'ajoute le recyclage de la vapeur d'eau par la végétation qui pourrait expliquer l'abondance et la régularité des pluies toute l'année dans cette zone. En conséquence, la saison sèche est peu marquée. A Zoétélé, en forêt équatoriale, la saison humide s'étend sur 9 mois (de Mars à Novembre) et la saison sèche sur 3 mois (de Décembre à Février). La pluviométrie moyenne annuelle sur la période d'étude (1998-2007) est de 1479 mm avec un maximum de 2162 mm en 1999.

- **La station Bomassa de Congo :** La station IDAF de Bomassa est située dans le Parc National de Nouabalé-Ndoki (3°32'12''N-0°40'29''N ; 15°28'26''E-17°34'8''E) en pleine forêt équatoriale du Nord de la République du Congo. Ce parc national, couvert essentiellement de forêts primaires, s'étend sur près de 4000 km² et représente l'une des plus grandes réserves des régions forestières de l'Ouest de l'Afrique Centrale. La zone est composée principalement des plateaux coupés de vallées encaissées. Les altitudes varient entre 330 et 600 m (au-dessus du niveau de la mer). Au Sud-Ouest de la zone, l'altitude diminue et les rivières passent dans les grandes plaines d'inondation dominées par les forêts marécageuses. Le climat du Parc National de Nouabalé-Ndoki (PNNN) est de type équatorial.

La pluviométrie moyenne annuelle varie entre 1450 et 1600 mm à Bomassa. La saison humide s'étend de Février à Novembre et la saison sèche de Décembre à Janvier, comme à Zoétélé (Cameroun).

Dans le réseau IDAF, les mesures de gaz dans les stations de Banizoumbou, Katibougou, Lamto, Zoétélé et Bomassa ont commencé depuis 1998 avec l'échantillonnage de NO_2 , NH_3 et HNO_3 . Pour les gaz O_3 et SO_2 , l'échantillonnage a débuté respectivement en 2001 et 2002. Dans le cadre de la période d'observation long terme (LOP) du programme AMMA, les sites IDAF Djougou et Agoufou ont commencé à être opérationnel en 2005. Jusqu'à présent (en 2011), les mesures de tous ces gaz continuent dans tous les sites IDAF.

2.2. Approche expérimentale : collecte et analyse des échantillons de gaz

2.2.1. Technique de mesure des gaz : capteur passif

Les mesures de gaz obtenues pour notre étude ont été réalisées par la méthode des capteurs passifs, qui est une technique de mesure de concentrations de gaz dans l'atmosphère.

Historiquement, le premier capteur basé sur le principe de la diffusion moléculaire fut élaboré par Palmes et Gunnison (1973) pour la mesure de SO_2 et H_2O . Il s'agissait d'un capillaire monté dans un récipient contenant une solution susceptible de réagir avec l'une ou l'autre de ces deux espèces. Le produit de la réaction chimique était alors analysé par colorimétrie.

Par la suite, de nombreux travaux de recherche furent effectués, essentiellement basés sur des mesures en intérieur (émissions de gaz lors de travaux ménagers). Ils permirent d'aboutir au tube de Palmes (Palmes et al., 1976) avec la mesure de NO_2 . Il consiste en un simple tube en matière acrylique, de 8 cm de long et de 1 cm de diamètre intérieur. Le gaz pénètre par une des extrémités laissée ouverte sur l'extérieur et progresse vers le fond du capteur par diffusion moléculaire. Une grille en inox imprégnée de triéthanolamine (TEA) placée au fond du tube, permet la collecte des molécules du gaz sous forme d'ions nitrites (NO_3^-). Ces ions sont ensuite analysés par spectrophotométrie. Plus tard on décida de laisser de côté cette méthode d'analyse au profit de la chromatographie ionique avec laquelle on obtenait de meilleurs résultats (Miller., 1984).

Ce modèle révéla vite quelques imperfections, surtout lors de son utilisation sur les sites de mesures exposés au vent ou plus généralement pour des mesures en extérieur. En effet, le

capteur étant basé sur la diffusion moléculaire laminaire, les turbulences engendrées par le vent influent sur la propagation des gaz dans le tube en diminuant le parcours de diffusion laminaire. Il s'ensuivait une surestimation systématique des résultats. Le problème fut résolu en plaçant à l'entrée une deuxième grille inox, faisant barrière au vent (Ferm., 1986). Cette nouvelle version du tube de Palmes permis de valider de bons résultats sans toutefois supprimer totalement cette surestimation.

Un autre système de piégeage fut mis au point pour la mesure de l'ozone troposphérique. Le capteur était toujours inspiré du tube de Palmes mais optimisé en remplaçant la grille de collecte inox par un filtre de cellulose (Whatman) imprégné d'une solution d'indigo-carmin (indicateur coloré : 5,5-disulfonate). La variation de couleur était quantifiée par colorimétrie (Grosjean et al., 1992, 1995 ; Grosjean and Williams, 1992, Grosjean and Hisham, 1992).

Depuis, le tube de Palmes, qui convient à la mesure de fortes concentrations, fut modifié pour accroître sa sensibilité. En effet, en réduisant la longueur du tube de 8 cm à 1 cm, et en élargissant son diamètre (2,5 cm), le flux de gaz à l'intérieur ainsi que le taux de collecte augmentent. On assure aussi, en rajoutant à l'entrée une membrane poreuse en Téflon, une diffusion constante à l'intérieur du tube (Ferm., 1991). Ce second type de capteur est évidemment plus approprié à la mesure de faibles concentrations, par exemple sur des sites éloignés de toute source de pollution.

L'optimisation du capteur passe par la recherche de solutions et de supports d'imprégnation plus performants. Les gaz étudiés actuellement sont le dioxyde d'azote (NO_2), l'ammoniac (NH_3), l'acide nitrique (HNO_3), le dioxyde de soufre (SO_2), l'ozone (O_3) mais aussi le monoxyde d'azote (NO), les COV (composés organiques volatils) et les acides organiques. Un résumé sur les polluants de l'air mesurés, leurs types de capteurs passifs et les méthodes analytiques correspondantes avec les solutions d'imprégnation peut être trouvé dans Krupa et Legge, (2000).

Le comité scientifique DEBITS/IGAC, dont dépend le programme IDAF, considère les travaux de Ferm (1991) comme travaux de référence dans le développement et l'application de la technique des capteurs passifs pour la mesure des gaz. En conséquence, les capteurs passifs IDAF ont été développés à partir des travaux de Ferm (Ferm., 1991 et 1994). Ils ont été l'objet de nombreux tests et études à commencer par un DESU (Boulve., 1997), point de départ de ce projet d'étude. En 1997-1998, Hammoud Al Ourabi a repris ce travail sur les capteurs passifs qui sont au centre de la thématique de sa thèse (Al-Ourabi, 2002). Ce travail a contribué d'une part, à améliorer les procédures de validation des capteurs et d'autre part, à

mettre en place depuis 1998 la mesure des gaz dans six stations du réseau IDAF (Al-Ourabi et Lacaux, 1999, Lacaux, 1999). La technique des capteurs passifs a déjà été testée en régions tropicales et subtropicales. Les résultats obtenus sont tout à fait satisfaisants (Ferm et Rodhe., 1997, WMO., 1997, Carmichael et al., 1996, 2003).

Les capteurs passifs représentent une méthode tout à fait adaptée au suivi long terme des concentrations gazeuses à l'échelle régionale des écosystèmes africains. Ils présentent de nombreux avantages sur le terrain comme par exemple l'absence de calibration, d'électricité et d'opérateur spécialisé sur site. De plus, ils sont petits, légers, réutilisables et peu onéreux.

- **Principe de fonctionnement du capteur passif**

Le principe de fonctionnement du capteur passif se base sur les deux phénomènes suivants :

- le phénomène physique de diffusion moléculaire ;
- la réaction chimique entre les molécules du gaz étudié et celles de la substance dont le filtre en cellulose est imprégné.

Le gaz dont la concentration moyenne doit être déterminée est transporté passivement dans le capteur par diffusion moléculaire. Il est piégé chimiquement sur un filtre imprégné d'une substance dissoute dans un solvant volatile (méthanol). Le produit de la réaction est récupéré par extraction dans un petit volume d'eau milli-Q (eau désionisée) avant d'être analysé par chromatographie ionique (ammonium, nitrates, sulfates). La dose ainsi mesurée est proportionnelle à la concentration du gaz dans l'air ambiant.

Dans le cadre du projet IDAF, un ensemble de capteurs passifs ont été développés au Laboratoire d'Aérodologie de Toulouse selon les procédures de DEBITS, qui sont basées sur les travaux de Martin Ferm (Ferm, 1991, 1994). La figure 2.3 présente la conception typique du capteur passif IDAF. Une membrane téflon (25 mm de porosité 1 μ m) est placée à l'entrée du capteur pour minimiser la diffusion turbulente interne et l'entrée des particules. Cette membrane est protégée contre les dommages mécaniques par une grille en acier inox. Dans la partie opposée à l'entrée d'air dans le capteur, se trouve un filtre imprégné d'un réactif chimique capable de capter spécifiquement chaque polluant (tableau 2.3).

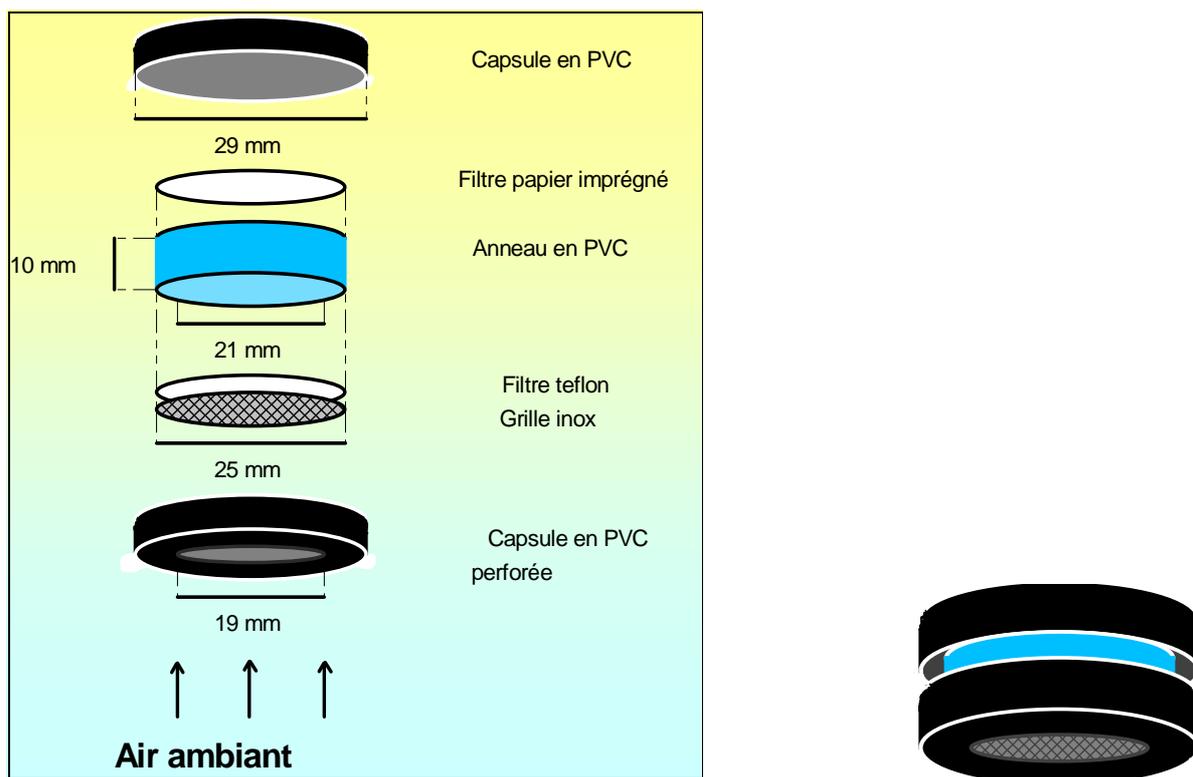


Figure 2.3 : Schéma du capteur passif IDAF (adapté de *ferm [1991]*)

Tableau 2.3 : Solutions d'imprégnation et réactions chimiques pour les capteurs passifs IDAF de HNO_3 , SO_2 , NO_2 , NH_3 , O_3 (WMO TD No: 829; Al-Ourabi, 2002).

Gaz (Couleur du capteur)	Solution d'imprégnation	Réaction chimique sur le filtre
HNO_3 et SO_2 (noir)	0.5 g NaOH dans 50 mL méthanol (pH>12)	$\text{HNO}_3(g) + \text{OH}^- \rightarrow \text{NO}_3^- + \text{H}_2\text{O}$ $2\text{SO}_2(g) + 4\text{OH}^- + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{H}_2\text{O} + 2\text{SO}_4^{2-}$
NO_2 (Gris)	0.44 g NaOH + 3.95 g NaI dans 50 mL méthanol (pH>12)	$2\text{NO}_2(g) + 3\text{I}^- \rightarrow 2\text{NO}_2^- + \text{I}_3^-$
NH_3 (blanc)	1.0 g acide citrique dans 50 mL méthanol	$\text{NH}_3(g) + \text{H}^+ \rightarrow \text{NH}_4^+$
O_3 (Gris & Noir)	0.25 g NaNO_2 + 0.25g K_2CO_3 + 0.5 ml glycerol bidistillé dans 50 ml d'eau	$\text{O}_3(g) + \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO}_3^- + \text{O}_2$

- **Principe du Calcul de la concentration de gaz dans l'air**

Lorsqu'une espèce chimique présente un gradient de concentration dans un milieu physique, il se crée un transport de cette espèce des zones de fortes concentrations vers celles de faibles concentrations. Le principe de diffusion moléculaire nous indique donc que les molécules de gaz vont migrer des concentrations les plus fortes (dans l'air) vers les concentrations les plus faibles (dans le capteur) afin de compenser ce gradient de concentration (figure 2.4).

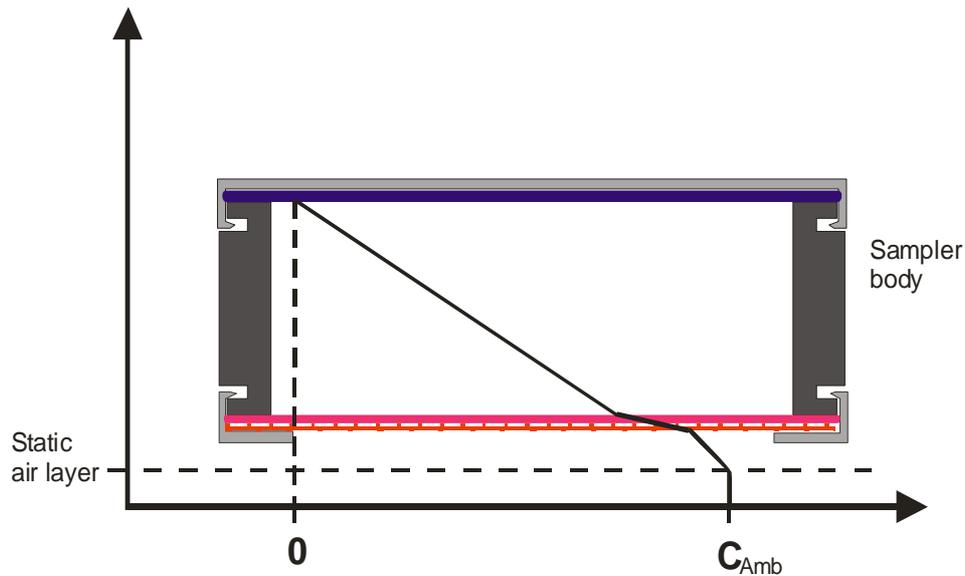


Figure 2.4 : Représentation des gradients de concentrations à l'intérieur et à l'extérieur d'un capteur passif.

On peut donc déterminer la concentration du gaz considéré à partir de la première loi de diffusion de Fick appliquée dans une seule direction de l'espace. Dans l'axe du capteur, le flux s'exprime par l'équation suivante (1):

$$\Phi = -D (dC/dL) \quad (2.1)$$

Φ est le flux de diffusion en $\text{mol.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$.

- D est le coefficient de diffusion en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$.

- dC/dL est le gradient de concentration du gaz dans le capteur en (mol.m^{-4}) . Il est négatif dans la direction du flux.

Or, par définition le flux de diffusion est la quantité de matière qui traverse par seconde l'unité d'aire d'une surface normale au mouvement de transfert étudié :

$$\Phi = X/(A.t) \quad (2.2)$$

X est le nombre de molécules de gaz piégés sur le filtre de cellulose (moles).

A est la section du capteur perméable à l'air (fonction du trou d'entrée) en m^2 .

t est la durée d'exposition du capteur en secondes (s).

En égalant les équations (1) et (2), on obtient :

$$dC = (-X.dL)/(D.A.t) \quad (2.3)$$

Soit, en intégrant C de zero à la concentration ambiante C_{amb} :

$$C_{amb} = [(L/A).X]/(t.D) \quad (2.4)$$

C_{amb} est la concentration du gaz étudié dans l'air en mol.m^{-3} .

Le facteur L/A est le coefficient de résistance de l'air et dépend des dimensions du capteur (figure 2.3) :

$$L/A = (L_a/A_a + L_f/A_f + L_g/A_g + L_c/A_t) \quad (2.5)$$

Où L_a est la longueur de l'anneau (10^{-2} m), A_a est la surface de la section de l'anneau ($3,46.10^{-4}$ m²), L_f est l'épaisseur du filtre en téflon (175.10^{-6} m), A_f est la surface du téflon perméable à l'air ($2,27.10^{-4}$ m²), L_g est l'épaisseur de la grille inox (90.10^{-6} m), A_g est la surface de la grille perméable à l'air ($9,9.10^{-5}$ m²), L_c est l'épaisseur de la couche limite laminaire et A_t est la surface du trou d'entrée ($2,84.10^{-4}$ m²).

Dans le cadre du réseau IDAF, L_c a été déterminé expérimentalement lors de la validation du capteur passif IDAF par les travaux de thèse d'Al-Ourabi (2002). L'expérience consistait à exposer simultanément, pour un gaz donné, deux types de capteurs montés différemment. En analysant les deux filtres de ces capteurs exposés simultanément, il est possible d'accéder à la valeur de cette couche limite (L_c) et aussi de calculer le paramètre L/A. L_c a été déterminé à l'aide de l'analyse statistique de mesures effectuées sur une série de 200 capteurs. Un résumé de la détermination du paramètre L/A a été présenté lors de la synthèse de la validation des capteurs passifs IDAF dans Adon et al. (2010). Une synthèse de tous les résultats est présentée dans le tableau 2.4. La valeur de L/A pour tous les capteurs passifs IDAF est estimée à $47,5 \pm 1,6$ m⁻¹. La valeur de l'épaisseur de la couche limite laminaire (L_c) correspondante est $4,8 \pm 0,5$ mm (Al-Ourabi, 2002 ; Albinet (master)).

Tableau 2.4 : Synthèse des résultats de la détermination expérimentale de L/A et L_c (Al-Ourabi, 2002).

Gaz	NO ₂	NH ₃	HNO ₃	SO ₂	O ₃	Moyenne	Ecart type
Lc (mm)	5.2	4.5	5.3	4.6	4.3	4.8	0.5
L/A (m⁻¹)	48.9	46.5	49.5	46.8	45.7	47.5	1.6

Afin de convertir la valeur de la concentration ambiante (équation 2.4) en ppbv (1 ppbv = 10⁻⁹ volume de gaz/volume d'air), le gaz étudié est assimilé à un gaz parfait. L'application de la loi des gaz parfait donne l'équation suivante :

$$C_{\text{amb}} = (L/A \cdot X \cdot R \cdot T) / (t \cdot D \cdot P) \quad (2.6)$$

Avec :

C_{amb} : concentration du gaz considéré dans l'air (ppb).

X : la quantité de molécules collectées sur le filtre de cellulose (μmol) (corrigée du blanc).

R : la constante des gaz parfaits ($R = 0,08206 \text{ l.atm.K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$).

T : la température ambiante moyenne pendant la période d'exposition en Kelvin (K).

P : la pression atmosphérique moyenne pendant la période d'exposition du capteur (atm).

D : le coefficient de diffusion moléculaire du gaz dans l'air ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$).

t : la durée d'exposition du capteur en seconde (s).

$L/A = 47,5 \text{ m}^{-1}$, coefficient de résistance de l'air.

Les valeurs du coefficient de diffusion utilisées dans le calcul des concentrations des gaz sont présentées dans le tableau 2.5.

Tableau 2.5 : Valeurs des coefficients de diffusion des gaz.

Gaz	Masse Molaire (g/mol)	Coefficient de diffusion ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	Références
NO ₂	46	1,54. 10 ⁻⁵ (21°C)	Palmes et al. (1976) ; Ferm (1991)
NH ₃	17	2,51. 10 ⁻⁵ (25°C)	Coulson et Richardson (1954)
HNO ₃	63	1,32. 10 ⁻⁵	Ayers et al. (1994)
SO ₂	64	1,32. 10 ⁻⁵	Ayers et al. (1994)
O ₃	48	1,48. 10 ⁻⁵	Ferm (1991)

- **Mise en œuvre des capteurs passifs sur les sites IDAF**

Dans le réseau de mesure IDAF, le laboratoire de chimie du LA (Laboratoire d'Aérodologie) est en charge de la préparation et de l'analyse des capteurs passifs utilisés au niveau des sept sites de l'Afrique de l'Ouest et Centrale.

Chaque 2 mois, le laboratoire prépare deux lots de capteurs qui sont ensuite envoyés aux différentes stations de mesure du réseau IDAF. Les capteurs (d'un lot) sont exposés en duplicate (par paire) sous un support pendant un mois. Les capteurs du deuxième lot sont conservés dans le réfrigérateur pour être utilisés le deuxième mois. Le support d'exposition est positionné horizontalement sur un mât à une hauteur d'environ 2 m du sol pour les sites des savanes et 3 m pour les sites des forêts. La figure 2.5 donne un modèle d'exposition des capteurs. Pour chaque série d'envoi de capteurs, les « blancs du capteur » (voir section 2.2.3, « limite de détection ») sont gardés enfermés dans un sac en plastique à l'intérieur d'un flacon (donc non exposés) pour être utilisé comme « blanc de terrain » (field blank).

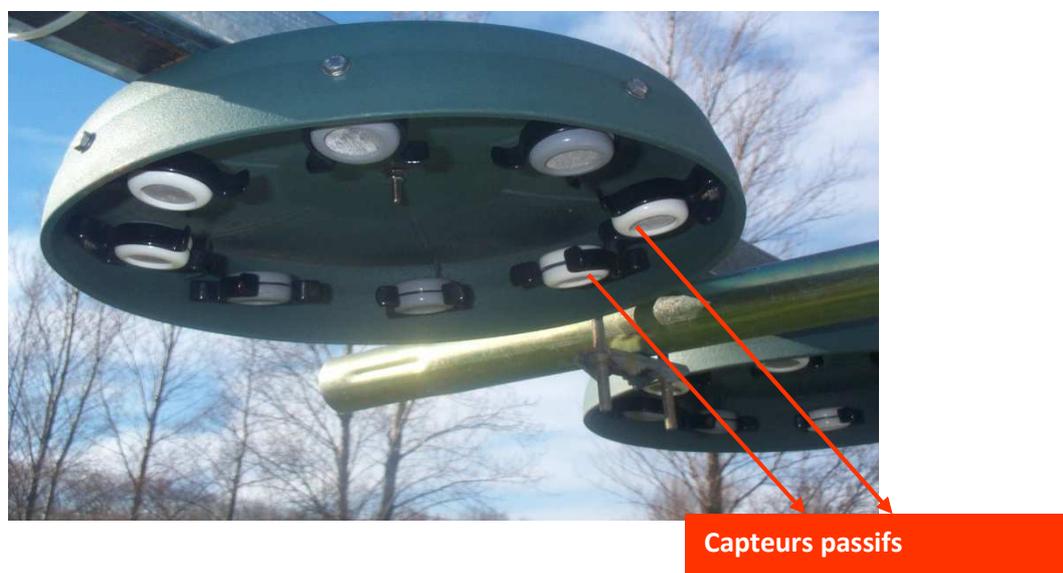


Figure 2.5 : Installation des capteurs passifs IDAF.

Pour les mesures des différents gaz dans le réseau IDAF, les capteurs sont différenciés par un code de couleurs : gris pour le NO_2 , blanc pour le NH_3 , noir pour à la fois le SO_2 et le HNO_3 , et panache gris et noir pour l' O_3 .

Les capteurs avant et après exposition sont conservés au réfrigérateur au laboratoire ou sur le site en essayant de minimiser le délai entre exposition et analyse. Tous les capteurs passifs (y compris les « blancs »), après échantillonnage sur les sites, sont renvoyés au Laboratoire d'Aérogologie de Toulouse pour analyse. Le laboratoire (Laboratory of the School for Chemistry and Biochemistry) de la « North West University » de Potchefstroom est chargé de la préparation et de l'analyse des capteurs passifs utilisés au niveau des trois sites IDAF en Afrique du Sud (Martins et al., 2007) selon un principe identique à celui du LA.

2.2.2. Technique d'analyse des capteurs passifs : la chromatographie ionique

- **Préparation de l'échantillon**

Dans le capteur, le filtre imprégné qui piège le gaz doit avoir une efficacité réactive complète. Pour les différents gaz étudiés, la capture chimique se fait par des réactions présentées au tableau 2.3. Le produit de la réaction est récupéré par extraction aux ultrasons dans un petit volume d'eau milli-q (eau désionisée). Le volume de désorption est de 10 ml pour les filtres des capteurs passifs noirs et gris et de 5 ml pour le filtre du capteur blanc. La solution ainsi obtenue est analysée par chromatographie ionique pour les ions piégés : NO_2^- (pour NO_2), NO_3^- (pour HNO_3 et O_3), NH_4^+ (pour NH_3) et SO_4^{2-} (pour SO_2).

Le laboratoire d'analyse chimique du LA possède un pôle de chromatographie ionique (site web d'IDAF <http://idaf.sedoo.fr>). Il est équipé de deux chromatographes ioniques (IC) de marque DIONEX (ICS 1000, DX 100) avec deux échantillonneurs automatiques (AS 50 et AS 40). Le tableau 2.6 présente une synthèse des instruments, les espèces analysées (pour les gaz) ainsi que le mode d'analyse.

Tableau 2.6 : Chromatographie ionique : paramètres analytiques.

Appareils (Logiciel d'exploitation)	Espèces analysées	Colonnes (4 mm) (Durée d'analyse)	Suppression	Composition de l'éluant (Débit)
DIONEX DX100 +Passeur d'échantillons AS 40 (Chromeleon 6.6)	Anions : NO_2^- , NO_3^- SO_4^{2-}	Echange Ionique AG4A-SC + AS4A-SC (9 mn)	Autosuppression DIONEX ASRS ULTRA	Mode Isocratique (1.8 mM Na_2CO_3 /1.7 mM NaHCO_3) (2 mL/mn)
DIONEX ICS 1000 +Passeur d'échantillons AS 50 (Chromeleon 6.6)	Cations : NH_4^+	Echange Ionique CG12A + CS12A (14 mn)	Autosuppression DIONEX CSRS ULTRA	Mode Isocratique 20 mM $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{H}$ (MSA) (1 mL/mn)

Les procédures de collecte d'échantillons ainsi que les procédures analytiques des mesures (gaz, aérosols, pluie) réalisées sur chacun des sites du système d'observation IDAF, sont conformes aux standards internationaux pour l'instrumentation, pour les protocoles de collecte et les techniques d'analyses mises en œuvre. La qualité des mesures des concentrations dépend à la fois du capteur mais aussi des procédures (standardisées et accréditées) utilisées pour l'analyse chimique. Depuis 1996, le Laboratoire d'Aérologie

analytique participe au programme d'inter comparaison dans le contrôle de qualité de données, organisé deux fois par an par le programme WMO/GAW (World Meteorological Organisation/ Global Atmospheric Watch). Tous les résultats du LA sous la référence 700106 sont accessibles à l'adresse <http://qasac-americas.org/>. La figure 2.6 présente un exemple des derniers résultats obtenus par le LA. Ces résultats permettent d'afficher une précision analytique de 12 paramètres avec une incertitude maximale de $\pm 5\%$.

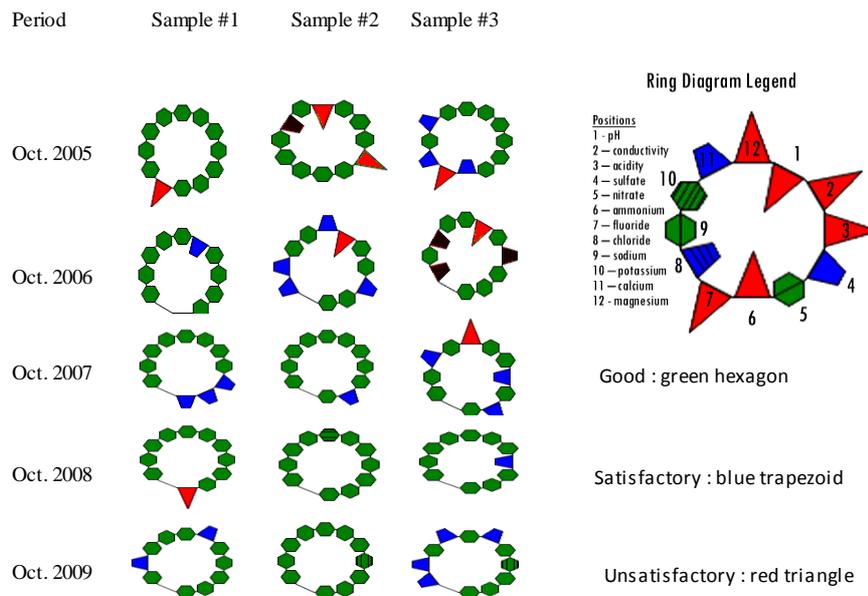


Figure 2.6 : Résultats du laboratoire analytique d'Aérodologie au programme d'inter comparaison WMO de 2005 à 2009. Résultats en anneaux des concentrations mesurées sur 3 échantillons tests.

- **La limite de détection et la reproductibilité du capteur**

Le minimum détectable ou « blanc du capteur » est le signal chimique donné par un capteur qui n'a pas été exposé à l'air ambiant pendant une durée d'exposition (un mois). Les valeurs de chaque série du « blanc du capteur » seront déduites de chacune des mesures correspondantes aux séries des capteurs exposés. La limite de détection de chaque type de capteur a été établie à l'aide de blancs de terrain pour l'ensemble de la période de mesure (1998-2007), ce qui représente une valeur moyenne statistique déterminée à partir d'environ 230 blancs analysés pour chaque gaz. Ainsi, les capteurs IDAF utilisés sur les sites de l'Afrique de l'Ouest et Centrale ont une limite de détection de $0,07 \pm 0,03$ ppb pour HNO_3 , $0,2 \pm 0,1$ ppb pour NO_2 , $0,7 \pm 0,2$ ppb pour NH_3 , $0,05 \pm 0,03$ ppb pour SO_2 et $0,1 \pm 0,1$ ppb pour l' O_3 . L'analyse de l'ensemble de notre base de données indique que 12% pour HNO_3 , 4% pour NO_2 et 13% pour SO_2 sont en dessous de la limite de détection. Seules les données

en dessus de la limite de détection ont été utilisées dans ce travail. Pour les capteurs utilisés en Afrique du Sud, les limites de détections sont estimées à 0,1 ppb pour HNO₃, 0,05 ppb pour NO₂, 0,2 ppb pour NH₃, 0,1 ppb pour SO₂ et 0,6 ppb pour O₃ (Martins et al., 2007).

L'exposition simultanée de deux capteurs passifs (duplicates) pour un même gaz lors de chaque série de mesure sur le terrain, permet de déterminer la reproductibilité de la mesure en calculant la covariance des duplicates. Ce calcul a été réalisé pour les 10 ans de mesure sur l'ensemble des sites. La précision de chaque capteur est ainsi estimée respectivement à : 20%, 9,8%, 14,3%, 16,6% et 10% pour HNO₃, NO₂, NH₃, SO₂ et O₃. Ces résultats obtenus en Afrique de l'Ouest et Centrale sont comparables à ceux obtenus en Afrique du Sud où la reproductibilité calculée est de : 20%, 8,3%, 15,3%, 16,6% et 2,4% pour HNO₃, NO₂, NH₃, SO₂ et O₃. Ces pourcentages sont considérés comme la norme acceptable recommandée par l'union européenne pour un suivi de concentrations gazeuses (EU, 1999).

2.2.3. Validation des résultats : mesures et analyses

Les protocoles de mesure dans le réseau IDAF permettent d'acquérir des données pertinentes pour répondre aux objectifs scientifiques fixés initialement. La démarche « qualité » des protocoles mis en place, est assurée par l'application de normes internationales sur les instruments, les techniques de prélèvement et les analyses associées, avec une cohérence sur l'ensemble des sites de mesure. Les premiers développements techniques des capteurs passifs dans le réseau IDAF s'inscrivent dans le cadre des travaux des thèses de Dhammapala (1996) et d'Al-Ourabi (2002), et ont permis d'équiper le réseau à partir de 1998 pour NO₂, HNO₃, NH₃ et SO₂ puis en 2000 pour O₃. Les capteurs passifs IDAF ont aussi été comparés à une autre technique de mesure, celle des analyseurs actifs. La figure 2.7(a,b,c,d) présente les comparaisons des concentrations des gaz mesurées par les capteurs passifs IDAF (intégration sur 15 jours) et les analyseurs actifs. Tous les gaz mesurés montrent une bonne corrélation entre les deux techniques de mesure. Les gaz NO₂, SO₂, et O₃ ont un ratio moyen (de concentration) comparatif respectivement de 1 :0.9, 1 :0.8 et 1 :0.7 entre les méthodes passive et active d'échantillonnage. Les coefficients de corrélation sont élevés avec R² = 0,95 pour NO₂, R² = 0,9 pour SO₂ et R² = 0,8 pour O₃ (figure 2.7(a,b,c)).

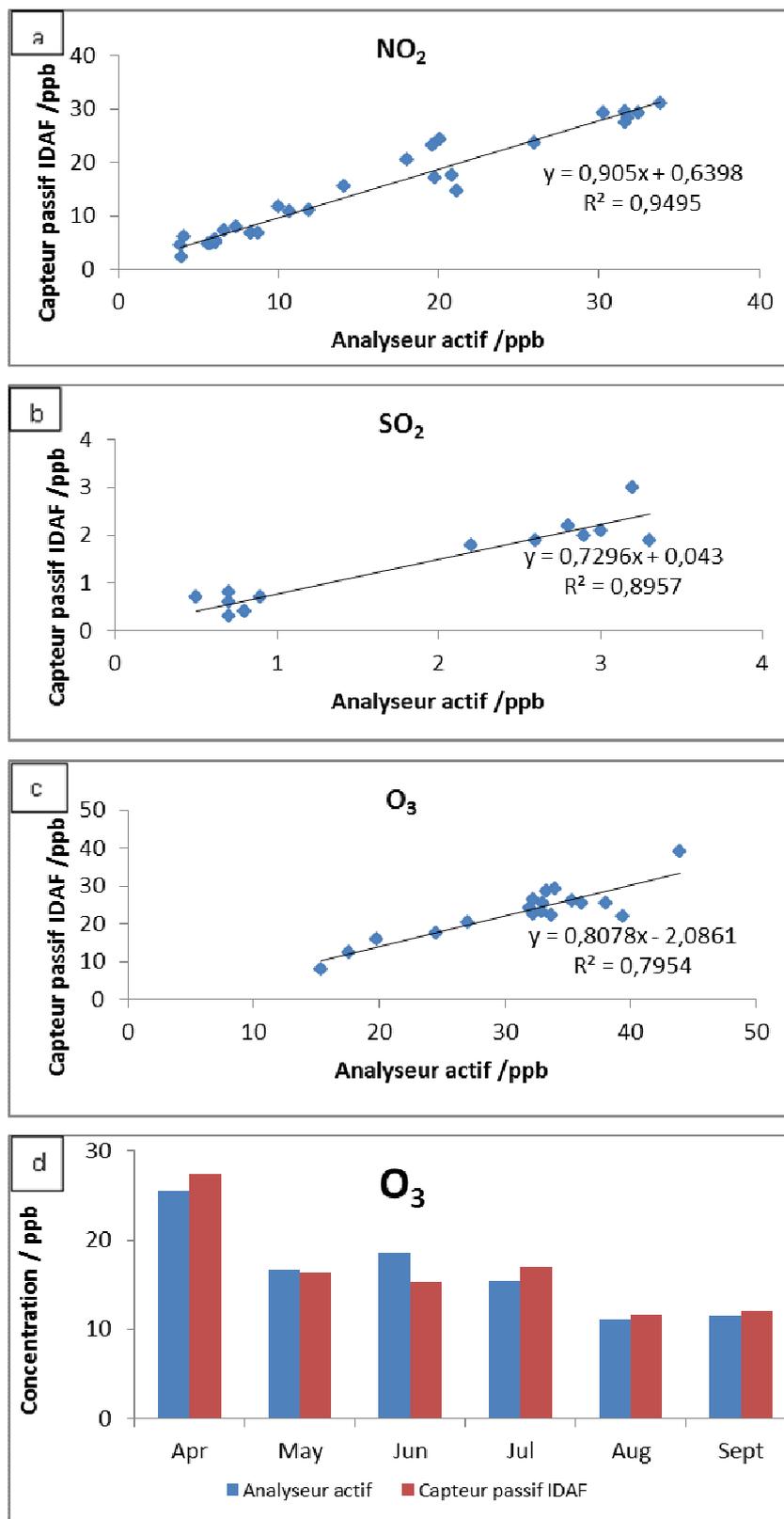


Figure 2.7 (a,b,c,d) : Comparaison des mesures avec capteur passif IDAF et analyseur actif pour des gaz NO₂ (a), SO₂ (b), O₃ (c) à Toulouse (France) de 1998-2000 ; pour O₃(d) à Djougou (Bénin) en 2006.

La faible corrélation d'O₃ par rapport aux autres gaz peut s'expliquer par le fait que l'ozone n'est pas mesuré directement dans le capteur passif mais bien le potentiel d'oxydation de l'atmosphère globale. En effet, l'ozone est le seul polluant qui a été mesuré indirectement en analysant la quantité de nitrate (NO₃⁻) formée pendant la réaction entre l'ozone et le nitrite (NO₂⁻) sur le filtre d'imprégnation (tableau 2.3). Pour le capteur passif de l'ozone, nous avons également effectué un test de validation sur le site de Djougou au Benin, où les concentrations d'ozone étaient mesurées en continu avec un analyseur actif pendant la campagne expérimentale d'AMMA (D. Serça, personnel communication, 2007). Les mesures réalisées avec les capteurs passifs IDAF et l'analyseur actif sont comparées pour la saison humide, d'avril à septembre 2006 (figure 2.7b). Les résultats observés montrent que les concentrations moyennes mensuelles d'O₃ sont comprises entre 10 et 25 ppb. Pour cette gamme, la différence maximale observée entre les deux techniques (passive/active) est environ 6%.

Pour compléter la validation des capteurs passifs développés au Laboratoire d'Aérogologie, il faut souligner la participation avec succès de ces capteurs à des tests de comparaison, avec les capteurs de référence d'IVL (Swedish Environmental Reserch Institute) et son laboratoire d'analyse accrédité par WMO ainsi qu'aux capteurs du projet GURME de WMO/GAW (Urban Meteorology and Environment). Les mesures des gaz SO₂, NH₃ et O₃ dans les stations Banizoumbou (Niger), Zoétélé (Cameroun), Lamto (Côte d'Ivoire) et Cape Point (Afrique du Sud) sur la période 1998-2000 étaient utilisées pour ce test (Carmichael et al., 2003). Sur ces sites, les capteurs IVL étaient exposés pour un mois en parallèle avec les capteurs IDAF (Ferm and Rodhe, 1997 ; Carmichael et al., 2003). Les mesures des capteurs IVL et IDAF sont bien comparables avec des coefficients de corrélation acceptables selon les incertitudes des mesures. La figure 2.8 présente les résultats pour des mesures de NH₃, et la corrélation ($R^2 = 0,76$) indique une incertitude de 24% entre les mesures des deux capteurs.

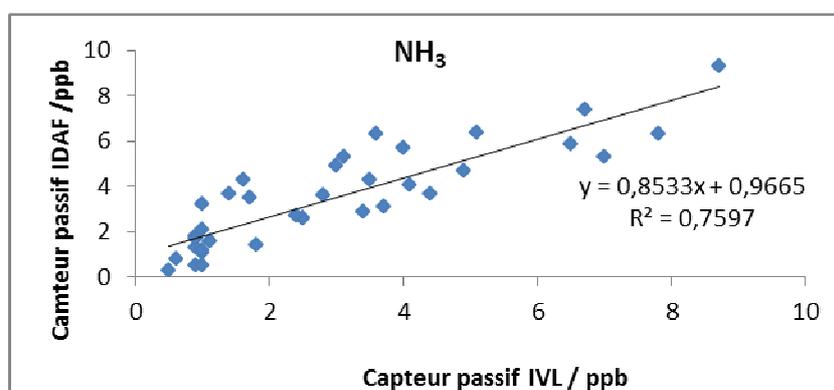


Figure 2.8 : Comparaison des capteurs passifs IDAF et IVL de NH₃ (projet GURME) exposé au niveau des stations IDAF de 1998 à 2000.

J'ai donc débuté mes travaux de thèse par une synthèse des travaux de validation et de comparaison entre mesures passives (capteurs passifs IDAF) et actives (analyseurs actifs). Ce travail m'a permis de valider et de construire ainsi une base de données originales de 10 ans de concentrations de NO₂, HNO₃, NH₃, SO₂ et d'O₃ pour les 7 sites d'Afrique de l'Ouest et Centrale (Adon et al., 2010). En Afrique du Sud, Martins et al. (2007) ont conduit un travail complémentaire sur les mesures de concentrations gazeuses réalisées sur les 3 sites IDAF d'Afrique du Sud. Une présentation synthétique des protocoles de collecte, de traitement et d'analyse des échantillons ainsi que les données de concentrations des différents gaz sont accessibles sur le site d'IDAF : <http://idaf.sedoo.fr>.

L'ensemble des résultats de validation et d'inter-comparaison assure la qualité et le contrôle des procédures d'échantillonnage et analytique. Les résultats obtenus avec les capteurs passifs IDAF en termes de détection limite, de reproductibilité et de précision, nous permettent d'utiliser avec confiance ces mesures de concentrations des gaz (NO₂, HNO₃, NH₃, SO₂, O₃) aux échelles mensuelles, saisonnières et annuelles pour les différents écosystèmes africains étudiés.

Avant d'aborder les résultats des mesures des concentrations dans le chapitre 3, nous présentons la méthode de calcul du flux de dépôt sec des gaz dont l'estimation fera l'objet du chapitre 4.

2.3. Méthode de calcul des flux de dépôt sec : méthode inférentielle (*inferential method*)

Plusieurs techniques de mesures des flux de dépôt sec existent, couvrant différentes échelles spatiales et temporelles. En général, elles sont regroupées en deux catégories : les méthodes directes et indirectes. Dans les méthodes directes, une détermination explicite du flux de la substance est faite à la surface, soit par la collecte de la substance déposée sur la surface elle-même, ou soit par la mesure du flux vertical dans l'air proche de la surface. Les méthodes indirectes dérivent des valeurs des flux par les mesures de quantités secondaires, telles que la concentration moyenne (méthode inférentielle) ou les gradients verticaux de la concentration moyenne de la substance en voie de dépôt (méthode des gradients), et en reliant ces quantités aux flux. La mesure directe du flux de dépôt sec comporte de nombreuses difficultés, ainsi le programme DEBITS a adopté une stratégie de détermination indirecte des flux de dépôt sec. Le dépôt sec est donc estimé à partir des mesures à long terme des concentrations des gaz et des particules, obtenues sur chacun des sites IDAF, et à partir de

vitesses de dépôt sec, calculées par modélisation en fonction des spécificités écologiques des sites et de l'espèce chimique considérée.

2.3.1. Généralité sur le dépôt sec

Le dépôt sec des espèces gazeuses et des particules correspond à leur transport entre l'atmosphère et les surfaces en l'absence de précipitation, et à leur absorption ou adsorption au niveau de la surface (sol, végétation, ...). Ce processus dépend de trois facteurs principaux qui conditionnent son efficacité :

- i) la turbulence atmosphérique ;
- ii) les propriétés chimiques de l'espèce ;
- iii) la nature de la surface elle-même.

La complexité et la variabilité des propriétés physiques, biologiques et chimiques de ces surfaces et la diversité des propriétés chimiques et physiques des substances rendent difficiles les paramétrisations des processus affectant le dépôt sec. Dans certains cas, la mesure en continu peut être utilisée pour estimer les différents taux de dépôt que l'on peut trouver dans une même région. Cependant, le principal moyen de calculer des bilans atmosphériques est d'utiliser des modèles numériques de météorologie et de chimie atmosphérique incluant la description des processus de dépôt sec (Wesely et Hicks, 2000).

Plusieurs formulations du dépôt sec ont été reportées dans la littérature. On peut trouver des modèles à une seule couche appelés habituellement « big-leaf (grande-feuille) » (Hicks et al., 1987 ; Baldocchi et al., 1987 ; Wesely, 1989, Erisman et al., 1994b...), des modèles multicouches (Baldocchi, 1988 ; Meyers et al., 1998...) et d'autres modèles impliquant les calculs de dépôt sec pour des applications spécifiques (Gao et al., 1993 ; Tetzlaff et al., 2002...). Une revue des paramétrisations de dépôt sec disponibles (ou valables) a été écrite récemment par Wesely et Hicks (2000). L'incertitude sur l'ensemble de ces modèles est d'environ 30 % pour l'estimation des vitesses de dépôt sec.

Généralement, le paramètre utilisé pour modéliser ou estimer le flux de dépôt sec est la vitesse de dépôt V_d , dont le produit avec la concentration (C) à une hauteur spécifique (z) donne le flux (F). Cette méthode indirecte pour la détermination des flux de dépôt qualifiée de méthode inférentielle (« inferential method », en anglais) est donc basée sur l'application directe de l'équation (2.7) :

$$F = -V_d(z).C(z) \quad (2.7)$$

Par convention, le flux de dépôt est considéré comme négatif, indiquant un flux vers le bas.

La méthode inférentielle a été largement utilisée dans d'autres études pour différents types d'écosystèmes, comme dans Shen et al. (2009), Pineda and Venegas (2009), Jin et al. (2006), Zhang et al. (2005), Zhang et al. (2009), Delon et al. (2010) et Flechard et al. (2011). Cette approche est bien adaptée lorsque les observations sont disponibles en continu, mais les flux dérivés sont clairement dépendants de la validité des estimations des vitesses de dépôt sec.

Wesely and Hicks (2000) ont indiqué que bien que les modèles aient été améliorés et qu'ils aient pu donner des résultats satisfaisants au niveau de sites spécifiques sous des conditions précises, il reste de nombreuses incertitudes et des recherches supplémentaires sont nécessaires. Récemment, Zhang et al. (2003b) ont développé un modèle big-leaf (en Amérique du Nord) dans lequel une paramétrisation révisée du dépôt sec a été proposée. L'évaluation du modèle de Zhang et al. (2003b) avec les résultats expérimentaux en forêts tropicales denses (en Asie) a montré que la paramétrisation révisée permet d'obtenir des vitesses de dépôts secs réalistes pour les gaz O_3 et SO_2 (Tsai et al., 2010 ; Matsuda et al., 2006). De plus, ce modèle permet d'estimer simultanément les vitesses de dépôt de plusieurs autres gaz tels que NH_3 , NO_2 , HNO_3 avec certaines approximations que nous expliciterons dans la présentation du modèle. Il est important de noter que très peu d'études de validation et d'estimation des vitesses de dépôt sec existent pour les écosystèmes tropicaux.

Dans le cadre du programme IDAF, pour estimer les flux de dépôt sec des différents gaz mesurés (O_3 , SO_2 , NO_2 , NH_3 et HNO_3) au niveau des différents sites, représentatifs des principaux écosystèmes africains, nous calculerons (dans le chapitre 4) les vitesses de dépôt pour chaque site à l'aide du modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b), appelé par la suite « Zhang03 ».

Le dépôt sec étant conditionné par la dynamique de la masse d'air et plus précisément par la turbulence, il est utile de rappeler succinctement des notions relatives à la couche limite de surface, avant de présenter à travers la paramétrisation de la vitesse de dépôt, le modèle de dépôt de Zhang03 que nous avons décidé d'utiliser dans cette étude comme référence.

2.3.2. Notion de couche limite de surface

Couche Limite de Surface (CLS) : Près de la surface se développe une couche limite de surface de quelques dizaines de mètres d'épaisseur. Elle est définie comme étant la zone où la direction du vent ne varie pas avec l'altitude. Elle est indépendante des forces de Coriolis. Tous les transferts turbulents sont en interaction directe avec la surface. Au sein de la CLS sont distinguées deux sous-couches : la sous-couche inertielle et la sous-couche de rugosité. La sous-couche inertielle est suffisamment au-dessus du couvert végétal. Ceci explique que

l'écoulement du vent est quasi-stationnaire (profil logarithmique, direction du vent constante) et que les flux verticaux de chaleur, de quantité de mouvement et de masse sont constants. La sous-couche rugueuse est sous l'influence de la rugosité du couvert végétal. L'écoulement du vent dépend alors directement des variables locales de surface telles que la rugosité, le couvert végétal, la topographie... C'est dans cette couche qu'ont lieu les échanges d'énergie, de quantité de mouvement, de polluants et d'autres particules entre le sol et l'atmosphère.

Dans la sous-couche inertielle, le profil vertical du vent horizontal suit une loi logarithmique qui dépend de la rugosité de la surface. En condition neutre, le profil du vent est donné par l'équation (2.8) :

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \ln \left(\frac{z-d}{z_0} \right) \quad (2.8)$$

Où $u(z)$ est la vitesse du vent horizontal à l'altitude z , k la constante de Von Karman, u_* la vitesse de frottement du vent (ou vitesse de friction), d la hauteur de déplacement (sous-entendu de l'origine du profil de vitesse), z_0 est la longueur de rugosité dynamique de la surface. La vitesse du vent s'annule à l'altitude $z = z_0 + d$, et dans les cas de couvert de faible hauteur, d est supposé égal à 0.

2.3.3. Paramétrisation de la vitesse de dépôt sec

La vitesse de dépôt indique l'efficacité de la surface à capter le gaz à un moment donné, et elle intègre l'effet de tous les processus impliqués dans le dépôt. La vitesse de dépôt est donc elle-même un facteur très complexe qui doit être paramétrée en termes de plusieurs facteurs fondamentaux physiques, chimiques et biologiques (végétatifs).

Les paramétrisations de la vitesse de dépôt sont basées en général sur le concept d'analogie électrique entre le processus de dépôt et la somme des résistances associées limitant les échanges entre le sol, la végétation et l'atmosphère (figure 2.9). Dans cette analogie électrique, la vitesse de dépôt est considérée comme l'inverse de la somme de trois principales résistances en série décrivant le transfert vertical (Wesely, 1989) :

$$V_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c} \quad (2.9)$$

Où R_a est la résistance aérodynamique, R_b la résistance de la sous-couche laminaire, et R_c la résistance de surface ou du couvert.

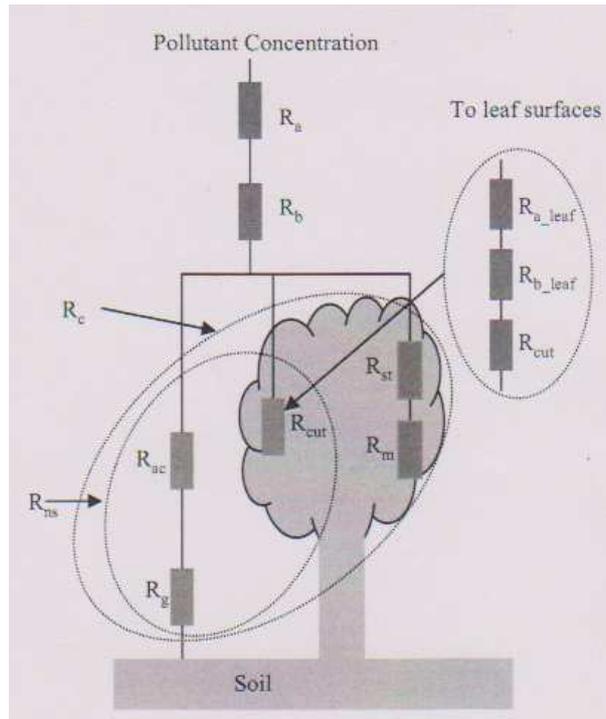


Figure 2.9 : Le modèle de résistances « big-leaf » (Zhang et al., 2003b).

Diverses expressions de R_a et R_b peuvent être trouvées dans la littérature (Erisman et al., 1994b ; Massman et al., 1994 ; Padro et al., 1991 ; Padro, 1996 ; Wesely et al., 2001). Les incertitudes sur ces deux résistances (R_a et R_b) des différents modèles sont faibles, bien que de grandes erreurs peuvent exister sous des conditions plus stables (Massman et al., 1994 ; Zhang et al., 2003a). La majeure partie de l'incertitude dans le calcul de V_d réside dans la détermination de R_c , résistance plus complexe.

- Résistance aérodynamique (R_a)

R_a est la résistance au transfert vertical d'un gaz dans la couche de surface atmosphérique. La limite inférieure de cette couche correspond à la hauteur de rugosité z_0 . La résistance R_a dépend principalement de l'intensité de la turbulence.

L'expression de R_a est (Padro et al., 1991):

$$R_a = \frac{1}{k u_*} \left[0,74 \ln \left(\frac{z}{z_0} \right) - \Psi_H \right] \quad (2.10)$$

Avec

$$\Psi_H = \begin{cases} = -4,7 \frac{z}{L} & 0 < \frac{z}{L} < 1 \text{ (stable)} \\ = 2 \times 0,74 \ln \left[\frac{(1+y)}{z} \right], \quad y = (1 - 9 \frac{z}{L})^{1/2} & -1 < \frac{z}{L} < 0 \text{ (instable)} \end{cases}$$

z_0 : la longueur de rugosité ;

z : la hauteur de référence à laquelle la vitesse de dépôt sec est évaluée ;

k : la constante de Von Karman ($k=0,4$) ;

u_* : la vitesse de friction ;

Ψ_H : la fonction de correction de stabilité pour la chaleur (Paulson, 1970) ;

L : la longueur de Monin-Obukov, une mesure de stabilité atmosphérique.

La vitesse de friction u_* est calculée dans le modèle en fonction de la stabilité de l'air via le nombre de Richardson. Le nombre de Richardson est défini par :

$$R_t = \frac{g \cdot z (\theta_a - \theta_s)}{T_a \cdot u^2} \quad (2.11)$$

Où θ_a est la température potentielle de l'air (K), θ_s la température potentielle de surface (K), g accélération due à la gravité, T_a température de l'air, et u vitesse du vent à la hauteur z .

Le paramètre de stabilité L peut être calculé conjointement avec u_* à partir des équations basiques de la couche de surface nécessitant seulement les températures à deux hauteurs différentes et le vent à une hauteur (Padro and Edwards, 1991).

La longueur de Monin-Oboukov est définie par :

$$L = - \frac{\rho \cdot C_p \cdot T \cdot u_*^3}{k \cdot g \cdot \theta_h} \quad (2.12)$$

Où ρ est la masse volumique de l'air, C_p la chaleur massique de l'air à pression constante, T la température de l'air, et θ_h densité de flux thermique convectif.

Les conditions d'application de l'équation (2.10) sont discutées dans Padro et al. (1991). Pour que des solutions des équations de la couche de surface existent pour u_* et L dans le cas de l'atmosphère stable, le nombre de Richardson doit rester inférieure à 0,21 (le nombre critique de Richardson). Au-delà de 0,21, certaines approximations doivent être faites, entre autres, assigner des valeurs limites à u_* (Padro et al., 1991). Cette situation est rencontrée dans des cas de vitesses de vent faibles.

Dans le cadre des simulations tri-horaires des vitesses de dépôt sec que nous avons réalisées dans cette étude, nous avons remarqué que le nombre de Richardson dépasse parfois 0,21 surtout en forêts et en savanes humides où la vitesse du vent est faible et par conséquent la résistance aérodynamique plus élevée. Bien que ces quelques valeurs (tri-horaires) élevées de R_a n'influencent pas vraiment la moyenne mensuelle des vitesses de dépôt sec calculée, nous

avons imposé des valeurs limites minimales à u_* comme l'a suggéré Padro et al. (1991). Après étude statistique, nous avons imposé une limite inférieure de u_* égale à $0,15 \text{ m s}^{-1}$ pour les sites de savanes et de $0,25 \text{ m s}^{-1}$ pour les sites de forêts.

- Résistance de la couche quasi-laminaire (R_b)

La résistance R_b est associée au transfert des gaz à travers la couche quasi-laminaire qui est en contact avec la surface. R_b dépend à la fois de la turbulence et de la diffusion moléculaire du gaz considéré.

L'expression de R_b est (Padro and Edwards, 1991) :

$$R_b = \frac{z}{k u_*} \left(\frac{\nu}{D_i} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (2.13)$$

Où ν est la viscosité cinématique de l'air et D_i est la diffusivité moléculaire d'une espèce i dans l'air.

- Résistance de surface (ou résistance de la canopée) (R_c)

R_c représente la résistance globale de la surface à l'absorption ou la destruction du gaz. R_c est la plus difficile à décrire, notamment pour des surfaces recouvertes de végétation, puisqu'elle implique l'interaction physique, chimique et biologique du polluant avec la surface de dépôt. Plusieurs paramétrisations existent pour l'approche (Hicks et al., 1987 ; Wesely, 1989; Ganzeveld and Lelieveld, 1995; Erisman et al., 1994b). Cependant, ces approches théoriques sont difficiles à valider par des mesures expérimentales à cause de la complexité des processus impliqués. Pour les surfaces avec couvert végétal, le modèle le plus fréquemment utilisé pour décrire R_c est le modèle de résistance de la « grande feuille ». Dans ce qui va suivre, à travers le modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b), nous détaillons l'expression de la résistance de surface car elle est le paramètre le plus important qui influe sur le flux de dépôt.

2.3.4. Présentation du modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b)

Zhang et al. (2003b) ont proposé une paramétrisation révisée de la résistance de surface (R_c) en se basant sur les résultats d'études relatifs à l'absorption non stomatique d' O_3 et SO_2 . Ces études ont été menées dans 5 différents types de végétation en Amérique du Nord (Zhang et al., 2002b ; Zhang et al., 2003a).

Nous notons que dans le code de dépôt de Zhang, les expressions de la résistance aérodynamique (R_a) et la résistance de la sous-couche laminaire (R_b) présentées respectivement aux équations (2.10) et (2.13) sont utilisées.

Dans le modèle de résistance proposé par Zhang et al. (2003b) (figure 2.9), la résistance de surface (R_c) est séparée en deux voies parallèles : l'une est la résistance stomatique (R_{st}) associée avec la résistance du mésophylle (R_m) et l'autre est la résistance non-stomatique (R_{ns}) qui inclut la résistance aérodynamique dans la canopée (R_{ac}), la résistance du sol (R_{sol}) et la résistance cuticulaire (R_{cut}).

Ainsi, la paramétrisation de R_c proposée dans Zhang et al. (2003b) est la suivante :

$$\frac{1}{R_c} = \frac{1 - W_{st}}{R_{st} + R_m} + \frac{1}{R_{ns}} \quad (2.14)$$

$$\frac{1}{R_{ns}} = \frac{1}{R_{cut}} + \frac{1}{R_{ac} + R_{sol}} \quad (2.15)$$

La résistance non-stomatique (R_{ns}) est calculée pour SO_2 et O_3 pour être ensuite extrapolée aux autres espèces gazeuses en se basant sur la similarité de leurs caractéristiques chimiques et physiques avec l'un ou l'autre gaz (Zhang et al., 2002a).

W_{st} est la fraction du blocage stomatique, qui est ajoutée au modèle en présence de rosée ou de pluie. Pour les canopées humides la formule suivante est proposée :

$$W_{st} = \begin{cases} 0 & SR < 200 \text{ W.m}^{-2} \\ \frac{SR - 200}{800} & 200 < SR \leq 600 \text{ W.m}^{-2} \\ 0,5 & SR > 600 \text{ W.m}^{-2} \end{cases} \quad (2.16)$$

Avec SR la radiation solaire (ou le rayonnement solaire).

Pour les canopées sèches, W_{st} est égale à 0.

La présence de pluie est déterminée par le taux de précipitation. Quant à l'apparition de la rosée, la formule de Janssen and Romer (1991) est utilisée, comme dans Brook et al. (1999a) :

$$\text{la rosée apparaît quand } u_* < c_0 \frac{1,5}{(q(T_a) - q(T_d))} \quad (2.17)$$

c_0 est une constante ayant une valeur de 0,3 quand la couverture nuageuse est $< \frac{2}{8}$, 0,1 lorsque la couverture nuageuse est $> \frac{6}{8}$ et 0,2 lorsque la couverture nuageuse est comprise entre $\frac{2}{8} - \frac{6}{8}$. $q(T_a)$ et $q(T_d)$ correspondent à la valeur de l'humidité spécifique saturée respectivement à la température de l'air T_a et à la température du point de rosée T_d .

Nous présenterons la méthode d'estimation de la résistance non-stomatique des gaz NO_2 , NH_3 et HNO_3 après la représentation explicite des différentes résistances qui composent la résistance de surface R_c . Cette présentation facilitera, par la suite, la compréhension des différentes approximations utilisées ainsi que le choix des paramètres physiologiques et

météorologiques dans le calcul de la vitesse de dépôt par le modèle de Zhang03 au niveau des sites IDAF.

- **Résistance du mésophylle (tissu des feuilles) (R_m)**

R_m est traitée dans le modèle comme dépendant seulement des espèces chimiques. Etant donné la connaissance limitée sur R_m jusqu'à nos jours, Zhang et al. (2002a) suggèrent une valeur de 100 s m^{-1} pour les espèces dont la solubilité est relativement faible et la capacité oxydante très faible, et une valeur de 0 pour toutes les autres espèces. Ainsi pour les espèces SO_2 , HNO_3 , NH_3 de solubilité élevée et O_3 et NO_2 de capacité oxydante élevée, R_m est prise égale à 0 (Zhang et al., 2002a).

- **Résistance stomatique (R_{st})**

Les stomates assurent l'essentiel des échanges gazeux entre l'atmosphère et la plante. En effet, pour permettre l'assimilation de CO_2 nécessaire à la photosynthèse, l'épiderme de la feuille est pourvu d'ouvertures appelées « stomates » qui comprennent des cellules de garde de chaque côté (figure 2.9).

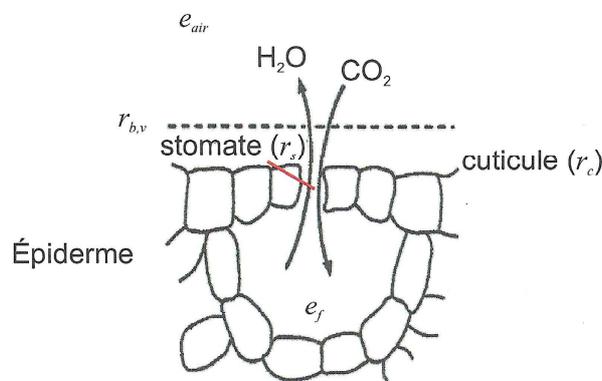


Figure 2.9 : Géométrie caractéristique d'un stomate et de l'épiderme d'une feuille (source : Wallens, 2004). e : la pression de vapeur d'eau (dans la feuille e_f , dans l'air e_{air}) ; $r_{b,v}$ est la résistance à l'échange de vapeur d'eau, due à la couche limite d'air autour de la feuille.

L'ouverture et la fermeture des stomates dépendent de plusieurs variables environnementales (Jarvis, 1976). La conductance stomatique est régulée par un certain nombre de facteurs tels que la lumière incidente sur la feuille, la température, le déficit en pression de vapeur, les niveaux de CO_2 ou encore le potentiel hydrique de la feuille (son contenu en eau). De

nombreux travaux ont relaté la paramétrisation de la résistance (ou conductance) stomatique (Jarvis et al., 1976 ; Baldocchi et al., 1987 ; Hicks et al., 1987 ; Massman et Van Dijken, 1989 ; Ducoudré et al., 1993 ; Wilson et Baldocchi, 2000) dont certains sont basés sur les travaux de Jarvis (1976).

La paramétrisation de R_{st} reste complexe. Dans la paramétrisation révisée de Zhang et al.(2003b), la résistance stomatique est calculée en utilisant un sous-modèle de type « two-big-leaf » de résistance stomatique (Zhang et al., 2001c ; Zhang et al., 2002a) pour toutes les espèces gazeuses. Toute la canopée est subdivisée en feuilles exposées au soleil et feuilles à l'ombre (« sunlit/shaded big-leaf »), ainsi la résistance stomatique est représentée par l'équation :

$$R_{st} = \frac{1}{G_s(PAR) \cdot f(T) \cdot f(D) \cdot f(\psi) \cdot D_i / D_v} \quad (2.18)$$

$G_s(PAR)$ est la conductance stomatique de la feuille « non-stressée », dépendant du rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR). Les fonctions adimensionnelles $f(T)$, $f(D)$, $f(\psi)$ représentent l'influence respectivement de la température de l'air T, du déficit de pression de vapeur D, du potentiel hydrique de la feuille (ψ) sur la conductance stomatique de la feuille. D_i et D_v sont les diffusivités moléculaires respectivement du polluant i et de la vapeur d'eau.

Le PAR est un paramètre important dans le sous-modèle de résistance stomatique du couvert, et il peut varier considérablement, selon qu'une feuille individuelle soit éclairée ou pas par le soleil. La conductance stomatique $G_s(PAR)$ est calculée selon la formule proposé dans Zhang et al.(2002a) :

$$G_s(PAR) = \frac{F_{soleil}}{r_{st}(PAR_{soleil})} + \frac{F_{ombre}}{r_{st}(PAR_{ombre})} \quad (2.19)$$

r_{st} est la résistance stomatique de la feuille « non-stressée », donnée par l'équation (2.20) :

$$r_{st}(PAR) = r_{stmin} \left(1 + \frac{b_{rs}}{PAR} \right) \quad (2.20)$$

Avec r_{stmin} la résistance stomatique minimale de la feuille qui dépend de l'occupation des sols (ou type de terrain), occupation mentionnée sous l'acronyme LUC (Land Use Coverage, en anglais); et b_{rs} une constante empirique.

F_{soleil} et F_{ombre} sont les totaux des LAI (Leaf Area Index (en anglais), indice de surface de feuille) au soleil et à l'ombre respectivement (Norman, 1982) :

$$F_{soleil} = 2 \cos\theta \left[1 - e^{\left(-0,5 \frac{LAI}{\cos\theta}\right)} \right] \quad (2.21)$$

$$F_{ombre} = LAI - F_{soleil}$$

Avec θ l'angle solaire zénith et LAI l'indice de la surface foliaire de la canopée.

PAR_{soleil} et PAR_{ombre} sont les PAR reçus par les feuilles au soleil et à l'ombre respectivement. Les calculs du PAR_{soleil} et PAR_{ombre} sont présentés à l'annexe I.

Dans l'équation (2.18), les fonctions adimensionnelles $f(T)$, $f(D)$, $f(\psi)$ représentent l'influence des divers stress pouvant agir sur une feuille (Brook et al., 1999a).

$f(T)$ représente l'influence de la température de l'air T :

$$f(T) = \frac{T - T_{min}}{T_{opt} - T_{min}} \cdot \left[\frac{T_{max} - T}{T_{max} - T_{opt}} \right]^{b_t} \quad \text{avec} \quad b_t = \frac{T_{max} - T_{opt}}{T_{opt} - T_{min}} \quad (2.22)$$

Où T_{min} et T_{max} sont des températures minimales et maximales (°C) qui indiquent les températures au-dessous et au-dessus desquelles l'ouverture complète des stomates se produit. T_{opt} est la température optimale qui indique la température de l'ouverture stomatique maximale.

$f(D)$ représente l'influence du déficit en vapeur d'eau de l'atmosphère sur la résistance stomatique. Elle est donnée par :

$$f(D) = 1 - b_{vpd} D \quad \text{avec} \quad D = e_{sat}(T) - e \quad (2.23)$$

Où b_{vpd} est la constante du déficit de pression de vapeur d'eau (kPa^{-1}) et D le déficit de pression de vapeur (kPa) ; $e(T)$ la pression de vapeur d'eau dans l'air (kPa) et $e_{sat}(T)$ est la pression de vapeur à saturation (ou saturante) (kPa) à la température de l'air T (°C). $e_{sat}(T)$ est donnée par :

$$e_{sat}(T) = 6,108 e^{\left(\frac{17,27T}{T+237,30}\right)} \quad (2.24)$$

$f(\psi)$ indique l'influence du potentiel hydrique de la feuille, tenant compte du contenu en eau de la feuille :

$$f(\psi) = \frac{(\psi - \psi_{c2})}{(\psi_{c1} - \psi_{c2})} \quad \text{avec} \quad \psi = -0,72 - 0,0013 SR \quad (2.25)$$

ψ_{c1} et ψ_{c2} (MPa) sont des paramètres qui spécifient la dépendance du potentiel hydrique de la feuille (ψ). Lorsque $\psi > \psi_{c1}$, il n'y a pas de stress du potentiel hydrique de la feuille et $f(\psi) = 1$.

Tous les paramètres nécessaires pour le calcul de R_{st} sont listés dans le tableau 4.1 (du chapitre 4) pour certains LUC (ou dans Zhang et al., 2003b pour tous les LUC). Zhang et al. (2001c) ont montré, par comparaison à d'autres modèles, que cette approche de « two-big-leaf » (« deux-grande-feuilles », en français) donne des estimations « raisonnables » de la résistance stomatique de la canopée pour différents types de végétations et valeurs de LAI.

- **Résistance aérodynamique dans la canopée (R_c)**

La résistance aérodynamique ou à l'écoulement dans la canopée (R_{ac}) est considérée comme dépendant de la hauteur et de la densité de la canopée. Elle ne dépend pas de l'espèce chimique. La formule utilisée dans Zhang et al. (2003b) est donnée par l'équation (2.26) :

$$R_{ac} = \frac{R_{ac0} LAI^{1/4}}{u_*^2} \quad (2.26)$$

Où R_{ac0} est la valeur de référence pour la résistance aérodynamique dans la canopée et u_* la vitesse de friction.

R_{ac0} varie avec différents types de canopées. Elle est plus élevée pour les canopées de grandes tailles. Pour certains types de couvert (LUC), une gamme de valeurs de R_{ac0} est donnée pour refléter le changement de structure de la canopée à différentes périodes de la saison. Une formule simple basée sur les valeurs minimales et maximales de LAI, est suggérée pour extraire les valeurs de R_{ac0} pour n'importe quel jour de l'année (Zhang et al., 2003b) :

$$R_{ac0}(t) = R_{ac0}(min) + \frac{LAI(t) - LAI(min)}{LAI(max) - LAI(min)} [R_{ac0}(max) - R_{ac0}(min)] \quad (2.27)$$

Où $R_{ac0}(t)$ correspond à la valeur de R_{ac0} à un jour quelconque de l'année.

- **Résistance du sol (R_{sol}) pour SO_2 et O_3**

La résistance du sol à l'absorption de polluant d'une espèce particulière est influencée par l'humidité du sol, le type et la texture du sol, et la litière du sol (Turner et al., 1973). Certaines discussions sur la résistance à la surface du sol pour SO_2 , O_3 et plusieurs espèces NO_y ont été menées dans Erisman et al. (1994b) et Ganzeveld and Lelieveld (1995). Le niveau de connaissance ou d'information sur les résistances du sol de SO_2 et O_3 demeure limité (Zhang et al., 2003b).

L'absorption d' O_3 par les sols est probablement contrôlée par les matières organiques et l'humidité du sol (Massman, 1993 ; Wesely and Hicks, 2000). En se basant sur des études

antérieures et une revue de mesures publiées (Erisman et al., 1994b ; Brook et al., 1999b ; Wesely and Hicks, 2000) Zhang et al. (2003b) ont suggéré une valeur de 200 s m^{-1} pour O_3 comme résistance du sol pour toutes surfaces végétatives et 500 s m^{-1} pour les surfaces non végétatives (comme la tundra, le désert, les cultures irriguées).

La résistance du sol (R_{sol}) est plus compliquée pour SO_2 à cause de sa sensibilité à l'humidité, sa dépendance au pH du sol et la co-déposition avec NH_3 (Erisman and Wyers, 1993 ; Erisman et al., 1994b). La résistance du sol au SO_2 est généralement plus faible lorsque la surface est humide et probablement différente pour les surfaces humectées par la rosée et la pluie (Zhang et al., 2003a). L'approche suivante est suggérée pour R_{sol} pour SO_2 :

$$R_{\text{sol}} = \begin{cases} R_{g\text{d}} \\ R_{g\text{ pluie}} \\ R_{g\text{ rosée}} \end{cases} \quad (2.28)$$

Où $R_{g\text{d}}$ représente la résistance du sol de SO_2 sur des surfaces de terre où il n'y a ni rosée, ni pluie apparue. Les valeurs de $R_{g\text{d}}$ pour les différents types d'occupation du sol sont données dans Zhang et al.(2003b). Pour les couverts ayant une humidité relativement élevée, $R_{g\text{d}}$ est supposée avoir une valeur plus petite (exemple : forêt tropicale, $R_{g\text{d}} = 100 \text{ s m}^{-1}$) comparée aux types de végétations avec des sols secs (désert, $R_{g\text{d}}(\text{SO}_2) = 700 \text{ s m}^{-1}$).

$R_{g\text{ pluie}}$ et $R_{g\text{ rosée}}$ sont des résistances du sol quand la pluie ou la rosée est apparue. $R_{g\text{ pluie}} = 50 \text{ s m}^{-1}$ et $R_{g\text{ rosée}} = 100 \text{ s m}^{-1}$.

Dans notre étude, nous avons utilisé les valeurs suggérées dans Zhang et al. (2003b) à l'exception des sites du domaine sahélien. Vu le caractère semi-aride du climat du Sahel, proche du Sahara (désert) et l'allure steppique de la végétation, nous avons supposé, pour la résistance du sol ($R_{g\text{d}}$), une valeur de 400 s m^{-1} pour O_3 et SO_2 pour les sites de Banizoumbou et Agoufou dans le domaine sahélien et une valeur de 300 s m^{-1} pour le site de Katibougou dans le domaine soudano-sahélien. Pour les sites humides du domaine guinéen (Lamto) et soudano-guinéen (Djougou), nous avons donc admis une valeur 200 s m^{-1} pour O_3 et SO_2 ($R_{g\text{d}}$), et pour les sites de forêt (Zoétélé et Bomassa) une valeur de 200 s m^{-1} pour O_3 et 100 s m^{-1} pour SO_2 (surface non humectée) comme résistance du sol.

- **Résistance cuticulaire (R_{cut}) pour SO_2 et O_3**

La résistance cuticulaire est associée à l'adsorption gazeuse à la surface de la feuille. Cette résistance dépend des caractéristiques chimiques du gaz trace, mais est également influencée par plusieurs facteurs, entre autres, la quantité de surface foliaire (LAI), la présence d'eau à la surface de la feuille, l'humidité relative (Baldochi et al., 1987 ; Flécharde et al., 1999 ; Van Hove et al. (1988, 1989), Erisman et al., 1994b). En effet, plusieurs études ont montré que la surface extérieure de la feuille peut agir comme un puits effectif, particulièrement pour les gaz solubles en condition humide (Hicks et al., 1989 ; Fowler et al., 1991 ; Erisman et al. (1993a, 1994a)). Plusieurs autres études sur des écosystèmes semi-naturels et des forêts semblent indiquer que les dépôts surfaciques (par exemple de NH_3) existent également en conditions sèches (Duyzer et al., 1992 ; Sutton et al., 1992 ; Wyers et Erisman, 1998).

La paramétrisation de R_{cut} dans Zhang et al. (2002b, 2003b) est légèrement différente de celle définie dans les modèles « big-leaf » traditionnels. Dans leur paramétrisation révisée, les résistances aérodynamique et quasi-laminaire des feuilles individuelles (voir figure 2.9) ont été considérées dans la paramétrisation de R_{cut} comme une fonction de la vitesse de friction, similaire au concept de l'adsorption totale des cuticules comme dans le cadre d'un modèle multi-couches (exemple, Baldochi, 1988). La résistance cuticulaire du couvert est paramétrée séparément pour des conditions sèches et humides (Zhang et al., 2002b) :

$$R_{cutd} = \frac{R_{cutd0}}{0.02 RH LAI^{1/4} u_*} \quad \text{pour les conditions sèches} \quad (2.29)$$

$$R_{cutw} = \frac{R_{cutw0}}{LAI^{1/2} u_*} \quad \text{pour les conditions humides}$$

Où RH est l'humidité relative (en pourcentage) ; R_{cutd0} et R_{cutw0} sont des valeurs de référence respectivement pour les résistances cuticulaires sèche et humide.

Les valeurs de R_{cutd0} et R_{cutw0} pour O_3 et les valeurs de R_{cutd0} pour SO_2 pour chaque type de LUC sont présentées dans Zhang et al.(2003b) et dans le tableau 4.1 (du chapitre 4). R_{cutw0} pour SO_2 est traitée différemment sous des conditions de rosée et de pluie, et pour toutes les surfaces végétatives les valeurs suivantes sont suggérées :

$$R_{cutw0} (SO_2) = 50 \text{ s m}^{-1} \quad \text{pour les conditions de pluie}$$

$$R_{cutw0} (SO_2) = 100 \text{ s m}^{-1} \quad \text{pour les conditions de rosée}$$

Lorsque la vitesse de friction u_* est très grande (exemple $u_* > 2 \text{ m s}^{-1}$), les équations (2.29) peuvent donner des valeurs faibles irréalistes. Ainsi, Zhang et al. (2003b) ont suggéré une limite inférieure de 100 s m^{-1} pour les canopées sèches et 20 s m^{-1} pour les canopées humides.

- **Les résistances non-stomatiques (R_{cut} , R_{sol}) des gaz NO_2 , HNO_3 et NH_3**

La résistance aérodynamique dans le couvert (R_{ac}) est non-dépendante des espèces chimiques ; les résistances cuticulaire (R_{cut}) et du sol (R_{sol}) sont donc estimées pour les autres espèces gazeuses par pondération des résistances associées à SO_2 et O_3 selon la formule suivante (Zhang et al., 2003b) :

$$\frac{1}{R_x(i)} = \frac{\alpha(i)}{R_x(\text{SO}_2)} + \frac{\beta(i)}{R_x(\text{O}_3)} \quad (2.30)$$

R_x représente les résistances non-stomatiques (R_{cut} et R_{sol}) des composants et i représente les espèces gazeuses particulières.

Les paramètres α et β sont deux facteurs « d'extrapolation ou de pondération » (scaling factor) basés sur les espèces chimiques (solubilité et réactivité demi-redox) (Wesely, 1989).

Les paramètres d'extrapolation pour un total de 31 espèces et plus de détail sur leur détermination sont présentés dans Zhang et al. (2002a). Nous présenterons, ici, quelques propriétés chimiques, caractéristiques de dépôt (et les approximations) sur lesquelles se sont basées Zhang et al. (2002a) pour déterminer les facteurs α et β pour NO_2 , HNO_3 et NH_3 .

Les propriétés chimiques contrastées d' O_3 et de SO_2 pourvoient un moyen d'estimer les résistances de surface d'autres substances par extrapolation selon les mesures de solubilité aqueuse et de pouvoir oxydant (Wesely, 1989 ; Wesely and Hicks, 2000). SO_2 et O_3 sont les deux espèces de base utilisées dans le présent schéma de dépôt sec, avec $\alpha = 1$ et $\beta = 0$ pour SO_2 , et $\alpha = 0$ et $\beta = 1$ pour O_3 .

NO_2 : L'hypothèse souvent utilisée dans la modélisation du dépôt sec de NO_2 est que sa solubilité limitée et sa capacité oxydante assez grande pourraient suggérer un taux de dépôt sec similaire à celui d' O_3 . Cependant, ceci n'est probablement vrai que lorsque la concentration ambiante de NO_2 n'est pas trop faible, conditions sous lesquelles les émissions de NO_2 et les réactions chimiques ne devraient pas trop affecter le dépôt de NO_2 (Zhang et al., 2002a, Wesely and Hicks, 2000). En effet, les émissions biogéniques de NO qui réagit rapidement avec O_3 pour produire NO_2 peuvent considérablement diminuer l'amplitude du flux descendant de NO_2 et parfois amener le flux à être dirigé vers le haut (émission). De plus, les plantes et les sols peuvent émettre NO_2 si la concentration ambiante est faible (Bakwin et al., 1992 ; Coe and Gallagher, 1992 ; Rondon et al., 1993 ; Gao et al., 1996). Toutefois, plusieurs études antérieures, avec parfois des mesures expérimentales, ont montré que le dépôt sec de NO_2 à la végétation est contrôlée par l'ouverture stomatique (Hanson and Lindberg, 1991 ; Neubert et al., 1993 ; Rondon et al., 1993 ; Walton et al., 1997) tout comme le

dépôt sec d'O₃ (Kerstiens and Lenzian, 1989 ; Ganzeveld and Lelieveld, 1995 ;...). De plus, l'humidité associée à la rosée ou la pluie peut augmenter le taux de dépôt sec de NO₂ (Eugster and Hesterberg, 1996), similaire à l'effet de l'humidité sur O₃. Rondon et al. (1993) et Pilegaard et al. (1998) ont trouvé que les vitesses de dépôt sec de NO₂ sont typiquement plus petites que celles d'O₃ sur un même site donné. Zhang et al., (2002a) ont indiqué que NO₂ et O₃ ont des « attitudes » similaires pour une variété de conditions (par exemple sèche et humide, jour et nuit) et les types de sol, et la vitesse de dépôt sec de NO₂ est généralement plus faible que celle d'O₃. Par conséquent, ils ont suggéré $\alpha=0$ et $\beta=0,8$ pour NO₂ ; ce qui donnera une vitesse de dépôt sec de NO₂ similaire à celle d'O₃, mais environ 10-20% fois plus faible.

HNO₃ : Plusieurs études et observations montrent que la résistance du couvert (R_c) des surfaces naturelles à l'absorption de HNO₃ est effectivement nulle (Huebert and Robert, 1985 ; Harrison et al., 1989 ; Dollard et al., 1987 ; Andersen and Hovmand, 1995), de sorte que le dépôt sec de HNO₃ est contrôlé seulement par les résistances aérodynamiques. Cependant, pour éviter des valeurs trop élevées de vitesse de dépôt pour HNO₃, Zhang et al., (2002a) ont assigné une petite valeur de résistance de surface à HNO₃, sous toutes les conditions météorologiques et au dessus de tous les types de surface, en choisissant $\alpha=10$ et $\beta=10$ (pour HNO₃). Il faut aussi noter que plusieurs modèles ont spécifié une limite inférieure pour R_c pour HNO₃ (par exemple 10 s.m⁻¹ dans Wesely, 1989 et Brook et al., 1999a).

NH₃ : L'ammoniac est très soluble dans l'eau et se dépose sur les surfaces des feuilles, par adsorption sur les cires, ou dissolution dans les films d'eau libre présents sur la feuille (Loubet, 2000). Il existe plusieurs études qui indiquent que l'adsorption cuticulaire de NH₃ augmente avec l'humidité relative (Van Hove et al., 1988, 1989 ; Erisman and Wyers, 1993). NH₃ est absorbé (ou adsorbé) très rapidement par les surfaces humides dont le pH n'est pas élevé et rapidement à travers les stomates lorsque les concentrations ambiantes sont élevées (Duyzer et al., 1992 ; Schjoerring, 1995 ; Van Hove and Adema, 1996 ; Yamulki and Harrison, 1996). La paramétrisation de la vitesse de dépôt de NH₃ dans de telles conditions devrait être assez simple. Cependant, si les concentrations ambiantes sont faibles, l'absorption à travers les stomates des feuilles peut être limitée, et NH₃ peut être émis par les feuilles (Dabney, 1990 ; Langford and Fehsenfeld, 1992). L'échange de NH₃ apparaît souvent à se comporter comme si « un point de compensation » existe (c'est-à-dire une concentration de surface non nulle). Dans une moindre mesure, une situation similaire existe pour NO₂.

En effet, le point de compensation est une valeur de concentration ambiante du polluant pour laquelle aucun échange net n'est observé entre l'atmosphère et la surface, c'est-à-dire le flux est nul à ce point. Cette notion permet d'introduire des sources de polluant séparées (émission par le sol ou par la végétation) comme dans le modèle d'échange de NH_3 développé par Nemitz (2000) : il décrit les échanges en terme d'adsorption de polluant à la surface des feuilles et d'échange bidirectionnels au niveau des stomates et du sol, gouvernés par des valeurs de point de compensation pour chaque compartiment, traduisant les potentiels d'émission et de dépôt du polluant (Baldocchi et al., 1987 ; Sutton et al., 1995). Le point de compensation de NH_3 a été largement étudié pour les végétations du climat tempéré (Sutton et al. (2007), pour une liste de citations). Cependant, la proximité des points de compensation aux concentrations ambiantes et la variabilité des valeurs des points de compensation entre les différents types de végétation et les conditions du sol différentes rendent difficile la construction de schémas de résistance de « surface-émission » ayant une large applicabilité (Wesely and Hicks, 2000).

Le dépôt surfacique de NH_3 pourrait être stimulé par l'interaction de NH_3 avec d'autres composés acides présents dans l'atmosphère. Ainsi, le terme de « co-déposition » est souvent utilisé pour désigner les dépôts couplés de NH_3 et SO_2 (Sutton et al., 1993 ; Sutton et al., 1995b). La co-déposition de SO_2 et NH_3 pourrait être importante sous des conditions humides (Erisman and Wyers, 1993).

Bien que les caractéristiques chimiques de NH_3 ne soient pas les mêmes que celles de SO_2 , ils ont des caractéristiques de dépôt similaires. Pour les paramètres d'extrapolation, Zhang et al. (2002a) ont suggéré $\alpha = 1$ et $\beta = 0$ pour NH_3 , les mêmes valeurs que pour SO_2 . L'échange bidirectionnel ou le point de compensation, la co-déposition, la dépendance de la résistance du sol de NH_3 et SO_2 au pH du sol, et d'autres processus n'ont pas été pris en compte dans la paramétrisation révisée de Zhang et al., (2003b) en raison de manque d'information sur plusieurs types de terrains et de la connaissance limitée à l'état actuel.

L'échange bidirectionnel de NH_3 et NO_2 ont été observé fréquemment au dessus de différents couverts végétaux, particulièrement lorsque leurs concentrations ambiantes étaient faibles, par exemple, au dessous d'un point de compensation (Dorsey et al., 2004 ; Trebs et al., 2006 ; Walker et al., 2006 ; Wichink Kruit et al., 2007). La méthode inférentielle n'est donc pas la plus appropriée pour évaluer les flux de NH_3 et NO_2 . Il y a eu des efforts dans le développement des modèles bidirectionnels (Sutton et al., 1998 ; Flécharde et al., 1999 ; Trebs et al., 2006, Zhang et al., 2010 ; Massad et al., 2010) ; cependant, aucun de ces modèles ne

peut être appliqué directement au dessus des différents couverts des écosystèmes africains en raison de l'absence des paramètres d'entrée nécessaires. Par conséquent, le modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b) est utilisé dans cette étude pour estimer les vitesses de dépôt sec de NO_2 et NH_3 , en plus de celles de O_3 , SO_2 et HNO_3 . Des erreurs dans les flux d'azote total estimés devraient être faibles considérant que l'échange bidirectionnel se produit dans des conditions de très faibles concentrations ambiantes de l'espèce concernée (Zhang et al., 2009).

2.4. Conclusion

Nous avons présenté, dans un premier temps, la méthode de mesure des concentrations des gaz par capteurs passifs, et dans un second temps, la méthode de calcul de la vitesse de dépôt sec.

Les mesures de gaz par capteurs passifs développées dans le réseau IDAF ont fait l'objet de nombreux tests de validation et d'inter-comparaison. Nous avons montré que les capteurs fournissent des mesures de qualité, adaptées à des suivis à long terme en réseau sur les sites reculés. Les résultats obtenus avec les capteurs passifs IDAF en termes de détection limite, de reproductibilité et de précision, nous permettent d'utiliser avec confiance ces mesures et d'en déduire les concentrations des gaz (NO_2 , HNO_3 , NH_3 , SO_2 , O_3) aux échelles mensuelles, saisonnières et annuelles pour les différents écosystèmes africains étudiés. Dans ce cadre, ma contribution a été de valider la base de données « gaz IDAF » comprenant 10 années de mesures, et de proposer une première caractérisation et quantification à long terme des concentrations gazeuses à l'échelle des écosystèmes africains. Ces résultats seront présentés dans le chapitre 3.

Dans une seconde phase, l'utilisation de cette base de données de concentrations avec les vitesses de dépôt sec simulées par le modèle « big-leaf » de dépôt de Zhang et al. (2003b), décrit dans ce chapitre, nous permet d'estimer les flux de dépôt sec par la méthode inférentielle. Pour une application efficace du modèle inférentiel, les conditions de surface et météorologiques autour des sites de mesures des concentrations doivent être incorporées dans la détermination de la vitesse de dépôt, les flux de dépôt sec dépendant fortement de cette valeur. Pour les sites IDAF, nous allons utiliser les données météorologiques spécifiques aux sites et adapter approximativement les paramètres physiologiques des plantes aux biomes africains. Nous aborderons dans le chapitre 4 les résultats de notre travail sur des flux de dépôt sec, après le chapitre 3.

Chapitre 3 :

Analyse spatio-temporelle des concentrations de gaz à l'échelle des écosystèmes

Sommaire

3.1. Introduction	77
3.2. Résultats des mesures des gaz sur le transect savanes sèches-savanes humides-forêts	78
3.2.1. Le dioxyde d'azote (NO ₂)	78
3.2.2. L'acide nitrique (HNO ₃).....	84
3.2.3. L'ozone (O ₃).....	88
3.2.4. L'ammoniac (NH ₃).....	93
3.2.5. Le dioxyde de soufre (SO ₂)	97
3.3. Conclusion.....	100
3.4. Article: Long term measurement of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in Africa using passive sampler (Adon et al., 2010).....	102

Les résultats présentés dans ce chapitre ont fait l'objet d'un article publié dans Atmospheric Chemistry and Physics (10, 7467-7487, 2010) : « Long term measurements of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in Africa using passive samplers », Adon et al., 2010, ainsi que diverses présentations sous forme de conférence et posters, en particulier lors des conférences internationales d'AMMA à Ouagadougou, Burkina Faso en Juillet 2009 et de l'EGU à Vienne en 2010.

Après une courte introduction (3.1), ce chapitre présente succinctement les principaux résultats établis à partir des mesures à long terme des gaz présentés dans cet article et nous présenterons leurs évolutions interannuelles (3.2). La première page de l'article se trouve à la fin de ce chapitre.

3.1. Introduction

Les concentrations atmosphériques du dioxyde d'azote (NO_2), de l'ammoniac (NH_3), de l'acide nitrique (HNO_3), du dioxyde de soufre (SO_2) et de l'ozone (O_3) sont mesurées mensuellement sur chaque site du réseau IDAF, puis calculées. Ces mesures sont obtenues à partir des échantillons de gaz collectés par capteurs passifs sur une période de 10 ans (1998-2007) en savanes sèches (Banizoumbou, Katibougou, Agoufou (5 ans)), en savanes humides (Lamto, Djougou (5 ans)), et en forêts (Zoétélé, Bomassa (8 ans)). Pour les sites d'Agoufou et de Djougou, la période d'étude est 2005-2009. Nous signalons que pour ces deux derniers sites, nous avons plutôt considéré la période de 2005-2007 dans Adon et al. (2010). Les résultats de cette étude concernent les sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Pour les 3 sites IDAF d'Afrique du Sud, le même type d'étude a été réalisé sur la période 1995-2005 par Martins et al.(2007).

Cette étude globale a permis l'analyse des variations de concentrations atmosphériques de ces gaz et ainsi d'établir les niveaux de concentrations mensuelles, saisonnières, annuelles et interannuelles représentatifs de chaque écosystème. Une étude comparative sur l'ensemble des trois types d'écosystèmes mettra en évidence les sources prédominantes suivant l'écosystème considéré. Les concentrations ainsi obtenues serviront au calcul du flux de dépôt sec représentatif de chaque écosystème africain (le chapitre 4).

La présentation et l'interprétation des résultats se feront par gaz et pour chaque type d'écosystème selon un transect savanes sèches – savanes humides – forêts.

3.2. Résultats des mesures des gaz sur le transect savanes sèches-savanes humides-forêts

Le tableau 3.1 présente la synthèse des concentrations moyennes annuelles des différents gaz mesurés sur chacun des sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale et du Sud, classés par écosystème, sur l'ensemble de la période d'étude (Adon et al., 2010 ; Martins et al., 2007). Tous ces résultats ont été obtenus en utilisant uniquement les échantillons de concentrations approuvés ou validés (nombre précisé entre parenthèse dans le tableau 3.1). En considérant toute la base de données, moins de 10% des gaz échantillonnés sont en dessous de la détection de limite. Nous allons nous référer à ce tableau au fur et à mesure que nous présenterons les résultats des mesures des gaz.

Tableau 3.1 : Concentrations moyennes annuelles des gaz (en ppb) mesurés sur les sites IDAF, nombre d'échantillons et année de prélèvement entre parenthèse.

	Station (période)	NO ₂	HNO ₃ ***	NH ₃	O ₃ *	SO ₂ **
Sites de l'Afrique de l'Ouest et Centrale						
Savanes sèches	Banizoumbou (98-07)	2,4 ±0,4 (113)	0,5 ±0,2 (112)	6,3 ±2,0 (112)	11,9 ±2,3 (76)	0,6 ±0,2 (66)
	Katibougou (98-07)	1,9 ±0,3 (117)	0,4 ±0,1 (116)	6,6 ±1,0 (113)	12,6 ±2,2 (73)	0,6 ±0,2 (68)
	Agoufou (05-09)	1,8 ±0,4 (28)	0,5 ±0,1 (28)	7,3 ±0,8 (25)	11,4 ±2,2 (23)	0,8 ±0,3 (26)
Savanes humides	Lamto (98-07)	1,0 ±0,3 (115)	0,3 ±0,1 (116)	4,0 ±1,2 (112)	10,9 ±1,8 (78)	0,5 ±0,2 (67)
	Djougou (05-09)	1,2 ±0,1 (30)	0,4 ±0,2 (30)	3,7 ±1,1 (27)	13,6 ±2,1 (29)	0,8 ±0,3 (29)
Forêts	Zoétéélé (98-07)	0,9 ±0,2 (112)	0,2 ±0,1 (113)	4,2 ±0,9 (103)	4,8 ±1,0 (73)	0,3 ±0,1 (65)
	Bomassa (98-06)	1,4 ±0,4 (83)	0,3 ±0,1 (81)	4,7 ±1,7 (76)	4,0 ±0,4 (45)	0,4 ±0,2 (44)
Sites de l'Afrique du Sud						
Savanes sèches	Amersfoort (97-05)	2,8 ±1,0 (105)	0,9 ±0,5 (26)	1,2 ±0,7 (85)	27 ±8,3 (89)	2,8 ±1,1 (10)
	Louis Trichardt (95-05)	0,7 ±0,4 (71)	0,2 ±0,1 (27)	1,2 ±0,7 (65)	35 ±8,6 (72)	0,8 ±0,7 (70)
Côtière/ Continental	Cape Point (95-05)	1,2 ±0,6 (114)	0,5 ±0,2 (29)	1,5 ±0,7 (120)	27 ±7,3 (114)	0,7 ±0,4 (106)

*En Afrique de l'Ouest et Centrale, le suivi d'O₃ a débuté en 2001 et du **SO₂ en 2002.

***En Afrique du sud, HNO₃ en 2003.

3.2.1. Le dioxyde d'azote (NO₂)

La figure 3.1(a,b,c) présente les variations mensuelles de NO₂ et de la pluviométrie respectivement en savanes sèches (3.1a : Banizoumbou, Katibougou, Agoufou), en savanes humides (3.1b : Lamto, Djougou), en forêts (3.1c : Zoétéélé, Bomassa). Les barres verticales indiquent les écart-types calculés sur la période d'étude (1998-2007).

En savanes sèches, représentées par les sites d'Agoufou et Katibougou au Mali, Banizoumbou au Niger

Nous rappelons que la savane sèche est caractérisée par une saison sèche d'Octobre à Mai et une saison humide de Juin à Septembre. Le mois de Mai représente la transition entre les deux saisons. L'évolution mensuelle présentée à la figure (3.1a) montre l'existence d'un cycle saisonnier marqué des concentrations de surface de NO₂ dans les régions arides et semi-arides d'Afrique de l'Ouest. Les concentrations moyennes mensuelles de NO₂ sur les 10 années de mesures sont comprises entre $0,9 \pm 0,3$ ppb et $4,3 \pm 1,0$ ppb à Banizoumbou, $1,2 \pm 0,5$ ppb et $3,1 \pm 0,9$ ppb à Katibougou, $0,8 \pm 0,4$ ppb et $3,7 \pm 1,0$ ppb à Agoufou (où 5 années de mesures sont disponibles). Les variations des concentrations mensuelles de NO₂ présentent la même évolution sur les trois sites de savanes sèches. Les concentrations augmentent significativement dès le mois d'Avril, au début de la saison des pluies. Un premier maximum est mesuré en Mai/Juin. Ceci est cohérent avec les émissions biogéniques de NO par les sols, issues de l'azote accumulé (sous forme d'ammonium et de nitrite) dans les sols, pendant la longue saison sèche. Ce contenu en azote des sols, résulte des pratiques agricoles comme le pâturage, l'application de fumier et la décomposition des résidus de céréales. Avec les premières pluies d'avril au début de la saison humide, la nitrification bactérienne est activée, et conduit à la consommation d'azote et à son émission sous forme d'importants « pulses » de NO (Yienger et Levy, 1995). Le NO est ensuite rapidement converti en NO₂ dans l'atmosphère. Après consommation de cet excès d'azote, les émissions de NO en saison humide diminuent mais restent à des niveaux relativement élevés (Serça et al, 1998). Des mesures de flux de NO par les sols ont été réalisées à Banizoumbou au Niger ; et ces flux d'émissions sont représentatifs des activités pastorales et de l'ordre de $6,09 \pm 2,64$ ng N(NO) m⁻².s⁻¹ (Serça et al, 1998). Ces mesures prouvent que les sols de savane au Niger sont de forts émetteurs de NO.

Un deuxième maximum se produit en fin de saison des pluies en Octobre/Novembre à Katibougou et Banizoumbou. Ce deuxième pic a pu être attribué au démarrage de la saison de feux de savanes de l'hémisphère nord (Jaeglé et al., 2004) ou à de nouveaux pulses de NO par les sols suite à la re-humidification des sols restés secs pendant une période plus ou moins longue. A Agoufou, site le plus haut en latitude, le second maximum observé en Septembre/Octobre résulte principalement de nouvelles émissions fortes de NO résultant des dernières pluies de fin de saison, qui surviennent après des périodes de sécheresse.

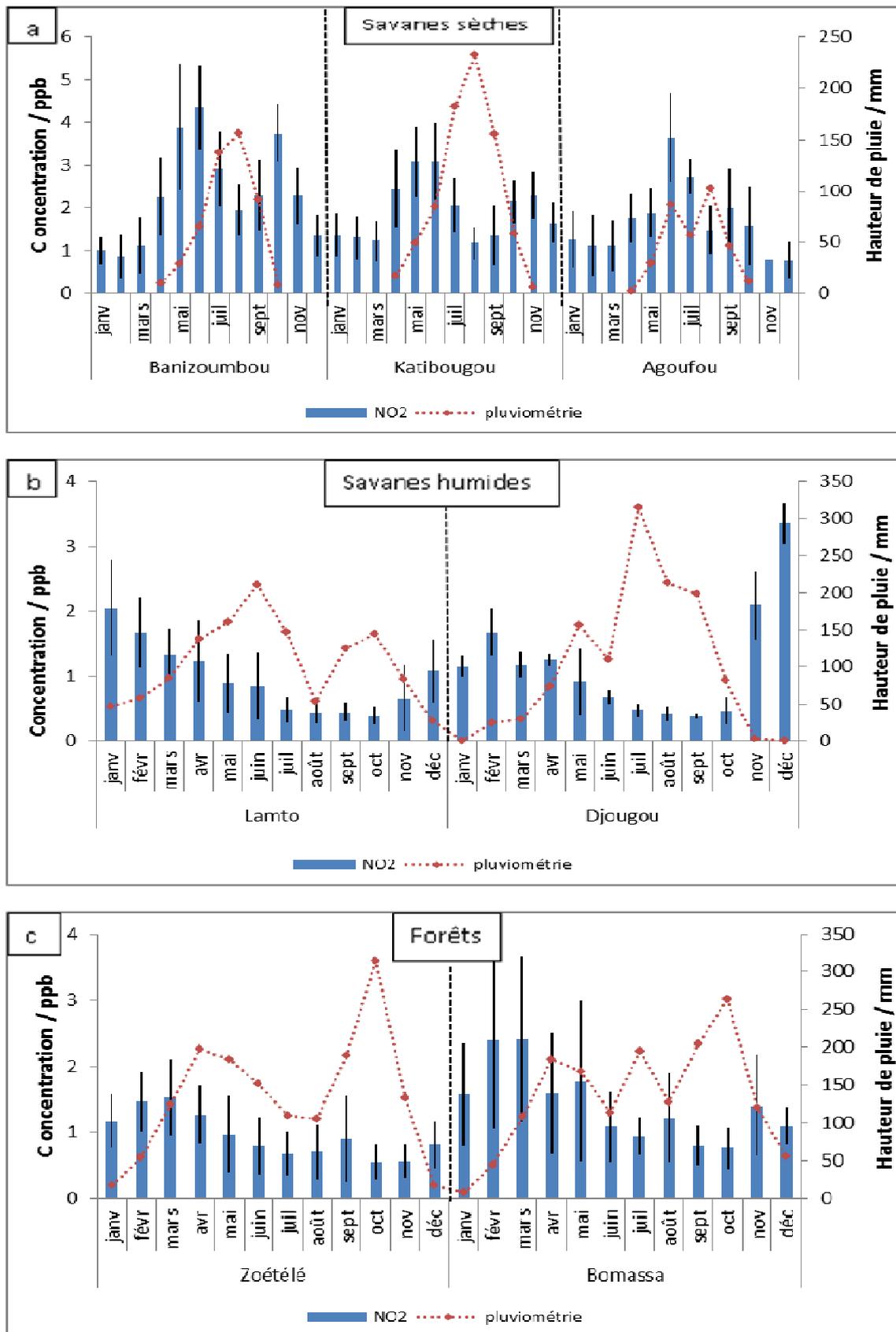


Figure 3.1. Evolution mensuelle des concentrations moyennes de NO₂ (1998-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).

En savanes sèches, les concentrations moyennes saisonnières sont de $3,1 \pm 0,6$ ppb, $2,1 \pm 0,5$ ppb et $2,5 \pm 0,6$ ppb en saison humide et de $1,9 \pm 0,5$ ppb, $1,8 \pm 0,2$ ppb et $1,4 \pm 0,3$ ppb en saison sèche respectivement à Banizoumbou, Katibougou et Agoufou. Les concentrations mensuelles sont élevées en saison humide sur tous les sites.

La concentration moyenne annuelle de NO_2 est de $2,4 \pm 0,4$ ppb, $1,9 \pm 0,3$ ppb et $1,8 \pm 0,4$ ppb respectivement à Banizoumbou, Katibougou, et Agoufou (Tableau 3.1). Les concentrations interannuelles de NO_2 sur le transect sont présentées dans le tableau (3.2).

Tableau 3.2 : Concentrations interannuelles de NO_2 (en ppb) dans les stations IDAF.

NO_2 (ppb)	Banizoumbou	Katibougou	Agoufou	Lamto	Djougou	Zoétélé	Bomassa
1998	2,0	2,2		1,5		1,3	2,0
1999	2,5	1,9		1,0		1,2	1,7
2000	3,0	2,3		1,2		1,1	1,4
2001	2,4	1,6		0,8		0,6	1,1
2002	2,9	2,3		0,9		1,1	2,1
2003	2,9	2,1		0,9		0,9	1,3
2004	2,1	1,7		0,7		0,8	1,1
2005	2,4	1,9	2,1	0,7	1,3	0,9	
2006	1,9	2,1	2,1	0,6	1,1	0,6	0,8
2007	1,8	1,4	1,3	1,1	1,2	0,9	
2008			1,7		1,2		
2009			1,9		1,1		
Moyenne	2,4	1,9	1,8	1,0	1,2	0,9	1,4
Ecart type	0,4	0,3	0,3	0,3	0,1	0,2	0,4
*C.V.(%)	19	15	17	29	10	23	31

*CV : Coefficient de Variation en %

La variabilité interannuelle sur la période d'étude est estimée à 19%, 15% et 17% pour les trois sites de savanes sèches. Cette variabilité semble être liée aux variations de l'intensité des sources biogéniques d'oxydes d'azote associées aux variations d'amplitude des précipitations. La quantité de pluie mais aussi sa variabilité et sa répartition dans le temps sont déterminantes pour les émissions de NO_x par les sols (Davidson, 1992; Scholes et al., 1997). Dans le cadre du programme AMMA, Delon et al. (2008) et Stewart et al. (2008) ont étudié la variation des émissions de NO par les sols en fonction de la répartition spatiale des pluies pour la saison humide 2006 au Sahel. Ces travaux de modélisation montrent clairement que les émissions de NO_x au Sahel en saison humide, sont fortement dépendantes de l'humidité des sols, et donc reliées à la distribution temporelle des pluies. Cependant, la part de chacun des deux processus reste difficile à évaluer.

D'une façon générale, aucune tendance notable n'est observée pour les variations interannuelles de NO₂ en fonction de la pluviométrie dans chaque station, chaque écosystème et sur le transect.

En savanes humides, représentées par les sites de Djougou au Bénin et Lamto en Côte d'Ivoire

Les concentrations moyennes mensuelles de NO₂ en savanes humides sont comprises entre $0,4 \pm 0,1$ ppb et $2,0 \pm 0,7$ ppb à Lamto (moyenne sur 10 années de mesures), et entre $0,4 \pm 0,1$ ppb et $3,4 \pm 0,3$ ppb à Djougou (moyenne sur 5 années de mesures) (Figure 3.1b). De façon générale, les concentrations atmosphériques de NO₂ diminuent lentement de janvier à octobre ; puis elles augmentent pour atteindre un maximum observé en décembre. Le site de Djougou au Bénin montre des concentrations très élevées en novembre et décembre tandis qu'à Lamto, les fortes concentrations sont observées en janvier et février. Ce résultat peut aussi être attribué aux émissions de NO_x par les combustions de biomasse. Les feux en Afrique présentent une saisonnalité bien connue avec au nord des feux de novembre à février, et au sud de juin à octobre. Galanter et al. (2000) ont montré que 75% des NO_x en surface près de l'équateur étaient dus aux combustions de biomasse ayant lieu de décembre à février. Menaut et al. (1991) assurent que 5 à 15% de la savane sahélienne (savane sèche), 25 à 50% de la savane Soudanienne et 60 à 80% des savanes guinéennes (savane humide) sont brûlées chaque année.

Les concentrations saisonnières de NO₂ à Lamto sont deux fois plus élevées en saison sèche ($1,4 \pm 0,4$ ppb) qu'en saison humide ($0,7 \pm 0,2$ ppb). A Djougou (Bénin) les concentrations de saison sèche sont quatre fois plus élevées ($2,0 \pm 0,6$ ppb) qu'en saison humide ($0,5 \pm 0,1$ ppb). En 2005-2006 pendant les périodes de mesures extensives d'AMMA, nous avons mesuré à l'aide d'un analyseur de NO_x actif (42i-TL Megatec) des concentrations similaires ($3,2 \pm 1,6$ ppb) en saison sèche et ($0,4 \pm 0,2$ ppb) en saison humide. Dans la savane humide de Lamto, Serça et al. (1998) ont mesuré des faibles émissions biogéniques de NO par les sols variant de $0,11 \text{ ng NO-N m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ en fin de saison sèche, à $0,56 \text{ ng NO-N m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pendant la saison humide. Les flux mesurés en saison humide sont cinq fois plus élevés qu'en saison sèche. Les fortes concentrations mesurées à Lamto en saison sèche ne sont donc pas à relier aux très faibles émissions de NO par les sols de savane, mais par les émissions de feux de savane à l'échelle régionale (Abbadie et al., 2006). Par opposition aux savanes sèches, les concentrations moyennes de NO₂ en savanes humides sont plus élevées en saison sèche (novembre à mars). Les concentrations moyennes annuelles de NO₂ sont de $1,0 \pm 0,3$ ppb à

Lamto et $1,2 \pm 0,1$ ppb à Djougou, avec une variabilité interannuelle de 29% et 10% respectivement (tableau 3.2). Cette variabilité est attribuée aux variations spatio-temporelles des feux de savanes. Les mesures IDAF nous ont permis de montrer que les combustions de biomasse en saison sèche pour les savanes humides, et les émissions de NO_x en saison humide pour les savanes sèches, ont des contributions comparables, soit : des concentrations $1,4 - 2,2$ ppb de NO_2 dues essentiellement aux combustions de biomasse et $2,1-3,1$ ppb de NO_2 dues aux émissions par les sols.

En forêts du Congo (Bomassa) et du Cameroun (Zoétélé)

Dans les forêts, les concentrations moyennes mensuelles de NO_2 sont comprises entre $0,5 \pm 0,3$ ppb et $1,5 \pm 0,5$ ppb à Zoétélé (10 années de mesures) et $0,8 \pm 0,3$ ppb et $2,4 \pm 1,3$ ppb à Bomassa (8 années de mesures) (Figure 3.1c). Les concentrations moyennes mensuelles augmentent en saison sèche de décembre à février. La variation saisonnière est similaire sur les deux sites avec un maximum observé en février-mars correspondant au maximum d'émissions par les combustions de biomasse. Dans la forêt du Mayombe au Sud Congo, Serça et al. (1998) ont mesuré des flux de NO en saison humide ($4,41 \text{ ng NO-N m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) trois fois supérieur à ceux de la saison sèche ($1,54 \text{ ng NO-N m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). Ces flux de NO par les sols sont relativement élevés mais ce NO rapidement transformé en NO_2 est capturé par la canopée des forêts (Jacob and Bakwin, 1991, Sparks et al., 2001). Dans les écosystèmes de forêts, les concentrations saisonnières de NO_2 des deux saisons sont comparables: $1,1 \pm 0,2$ ppb et $0,9 \pm 0,3$ ppb à Zoétélé et $1,6 \pm 0,5$ ppb et $1,4 \pm 0,5$ ppb à Bomassa, respectivement en saison sèche et humide. Cependant, les valeurs des concentrations en saison sèche restent un peu plus élevées. Ces mesures montrent que la source de combustion de biomasse en saison sèche est équivalente aux émissions par les sols qui sont atténuées par la capture de la canopée en saison humide. Les concentrations moyennes annuelles sont de $0,9 \pm 0,2$ ppb à Zoétélé et $1,4 \pm 0,4$ ppb à Bomassa, avec une variabilité interannuelle de 23% de 31%, respectivement (tableau 3.2).

En Afrique du Sud, représentée par les savanes sèches de Louis Trichardt et Amersfoort, et le site continental de Cape Point.

En Afrique du Sud, les concentrations moyennes annuelles mesurées à Louis Trichardt et à Cape Point sont de 0,7 ppb et 1,2 ppb respectivement (tableau 3.1). Ces valeurs sont proches des concentrations annuelles mesurées en savanes humides et en forêts d'Afrique de l'Ouest

et Centrale (0,9 à 1,4 ppb). Le niveau de concentration moyenne annuelle mesuré à Amersfoort (2,8 ppb), site influencé par les émissions industrielles, est comparable aux niveaux de concentrations observées pour les savanes sèches d'Afrique de l'Ouest (1,8 à 2,4 ppb). Des trois sites d'Afrique du Sud, celui d'Amersfoort présente les plus hauts niveaux de concentrations. Ce résultat est la conséquence des émissions anthropiques de NO_x qui influencent fortement ce site proche du Highveld, zone très industrialisée (Martins et al., 2007).

En conclusion partielle, nous pouvons remarquer que les concentrations de NO_2 sont plus élevées en savanes sèches qu'en savanes humides et forêts, en ce qui concerne les sites d'Afrique de l'Ouest et Centrale.

3.2.2. L'acide nitrique (HNO_3)

Les concentrations moyennes mensuelles de l'acide nitrique gazeux, sur une période de 5 à 10 ans, sont comprises entre $0,1 \pm 0,1$ ppb et $1,4 \pm 0,4$ ppb en savanes sèches, $0,2 \pm 0,1$ ppb et $0,7 \pm 0,3$ ppb en savanes humides et entre $0,1 \pm 0,1$ ppb et $0,5 \pm 0,3$ ppb en forêts équatoriales (figure 3.2(a,b,c)). Les valeurs minimales mesurées sont similaires pour tous les écosystèmes et représentent deux à quatre fois la valeur de la limite de détection. Les valeurs maximales présentent un gradient négatif des savanes sèches (1,4 ppb) aux forêts (0,5 ppb).

Les résultats montrent que l'évolution mensuelle de HNO_3 , observée dans chaque écosystème et sur le transect, est très comparable à celle de NO_2 (à l'exception du maximum de NO_2 observé en octobre/novembre en savanes sèches). Nous supposons que cette évolution similaire n'est pas liée à une interférence potentielle entre les capteurs passifs de HNO_3 et NO_2 . En effet, pour le capteur passif de NO_2 (Tableau 2.3, chapitre 2), les molécules de NaOH (hydroxyde de sodium) réagissent avec le CO_2 (dioxyde de carbone) atmosphérique pour former des molécules d'eau qui favorisent la rétention du NO_2 sur le filtre. En conséquence, le choix de cette solution basique permet la capture simultanée d'autres gaz acides tel que HNO_3 sur le filtre Whatman. Pour éviter ces interférences, il est important de noter que le choix de l'hydroxyde de sodium comme solution d'imprégnation pour l'échantillonnage de NO_2 a pour but de maintenir un pH fortement basique ($\text{pH} > 12$), limitant ainsi l'oxydation des ions nitrites NO_2^- en ions nitrates NO_3^- . De plus, le processus analytique pour les capteurs de NO_2 permet à la fois la détermination des ions nitrates et nitrites. Nos résultats montrent que les concentrations de nitrates sont très faibles, comparées à celles des ions nitrites NO_2^- , avec un rapport qui n'excède jamais 6%.

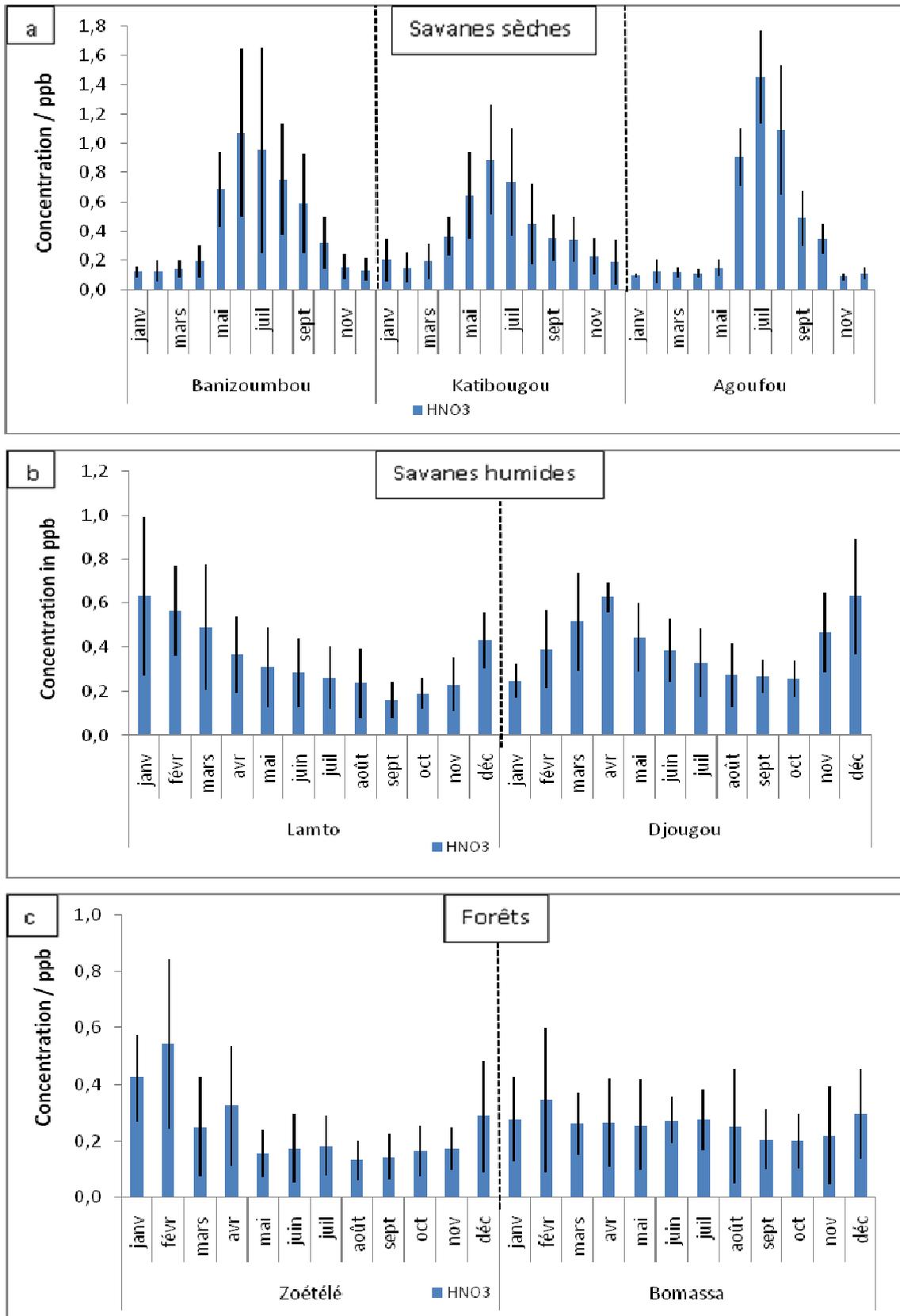


Figure 3.2 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes de HNO₃ (1998-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).

En outre, les concentrations des ions nitrites sont seulement utilisées pour déterminer les concentrations gazeuses de NO_2 . Dans le cas des filtres de HNO_3 , les ions nitrites (NO_2^-) ne sont pas détectés, ou du moins, les concentrations sont en dessous de la limite de détection. Par conséquent, nous pouvons supposer que les interférences entre HNO_3 et NO_2 sont négligeables.

Si nous considérons les saisons, les concentrations moyennes de HNO_3 le long du transect sont de $0,8 \pm 0,2$ ppb, $0,3 \pm 0,1$ ppb et $0,2 \pm 0,1$ ppb en saison humide et de $0,2 \pm 0,1$ ppb, $0,5 \pm 0,2$ ppb et $0,4 \pm 0,1$ ppb en saison sèche respectivement en savanes sèches, savanes humides et forêts.

Les plus fortes concentrations de HNO_3 sont mesurées en saison humide pour les écosystèmes sahéliens arides ou semi-arides, contrairement aux savanes humides et forêts. Ces résultats sont cohérents avec le cycle saisonnier de NO_2 mesuré, qui est maximum pendant la saison des pluies dans les écosystèmes savanes sèches. Des concentrations plus élevées de HNO_3 pendant la saison humide peuvent être expliquées par une production croissante de HNO_3 à partir des précurseurs à travers l'activité photochimique. Ce mécanisme est particulièrement actif en régions tropicales avec de fortes humidités et températures conduisant à une production maximale de radicaux hydroxyles (OH) (Graedel and Crutzen, 1993). Pour NO_2 , les savanes arides présentent un second maximum pendant la saison sèche (octobre/novembre), qui n'est pas observé pour HNO_3 . La saison sèche se caractérise par une charge élevée de particules de poussières désertiques et de faibles émissions de précurseurs NO_x . Ainsi, les particules désertiques capturent l'acide nitrique gazeux (HNO_3) et neutralisent l'acidité avec les carbonates de Ca^{2+} ou Mg^{2+} . Carmichael et al. (1997) et Dentener et al. (1996) ont déduit que les particules désertiques peuvent influencer de manière significative les cycles atmosphériques des gaz traces tels que HNO_3 , particulièrement en zones tropicales. L'interaction chimique des particules terrigènes avec l'acide nitrique gazeux pourrait expliquer les très faibles concentrations de HNO_3 pendant la saison sèche dans les écosystèmes de savanes sèches. Dans les écosystèmes africains, ces processus hétérogènes conduisant à la neutralisation de l'acidité par les particules désertiques alcalines ont été clairement soulignés pendant la saison humide pour expliquer les faibles pH des précipitations en savanes semi-arides (Galy-Lacaux et al., 2009 ; Galy-Lacaux and Modi, 1998). Dans les écosystèmes de savanes humides et forêts, les faibles concentrations de HNO_3 sont corrélées directement avec les faibles niveaux de concentrations de NO_2 mesurés (Serça et al., 1998 ; Jaeglé et al., 2004), et peuvent être aussi attribuées à la très forte solubilité de HNO_3 dans

l'eau, qui est ainsi facilement lessivé par les nuages et la pluie (Sigha et al., 2003 ; Yoboué et al., 2005).

Ce travail estime pour la première fois un ordre de grandeur pour les concentrations de HNO₃ représentatives des différents écosystèmes d'Afrique de l'Ouest et Centrale (Tableau 3.1). Sur notre période d'étude (10 ans), les concentrations moyennes annuelles de HNO₃ sont 0,5±0,2 ppb en savanes sèches et 0,3±0,1 ppb en savanes humides et forêts. Les concentrations interannuelles de HNO₃ ainsi que les coefficients de variations pour chaque station sont présentées dans le tableau 3.3.

Tableau 3.3 : Concentrations interannuelles de HNO₃ (en ppb) dans les sites IDAF.

HNO ₃ (ppb)	Banizoumbou	Katibougou	Agoufou	Lamto	Djougou	Zoétéélé	Bomassa
1998	0,2	0,2		0,3		0,2	0,2
1999	0,2	0,3		0,3		0,4	0,2
2000	0,7	0,3		0,3		0,2	0,4
2001	0,6	0,4		0,3		0,2	0,3
2002	0,6	0,5		0,5		0,4	0,2
2003	0,5	0,4		0,3		0,1	0,2
2004	0,4	0,4		0,4		0,2	0,2
2005	0,6	0,5	0,5	0,4	0,6	0,3	
2006	0,4	0,5	0,4	0,4	0,3	0,2	0,3
2007	0,3	0,4	0,5	0,3	0,3	0,3	
2008			0,4		0,5		
2009			0,4		0,4		
Moyenne	0,5	0,4	0,5	0,3	0,4	0,2	0,3
Ecart type	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
*C.V. (%)	39	26	13	18	31	31	28

*CV : coefficient de variation

La fluctuation interannuelle moyenne de HNO₃ est plus élevée à Banizoumbou (39%) pour des concentrations moyennes annuelles de 0,2 ppb en 1998-1999 à 0,7 ppb en 2000. Le coefficient de la variabilité interannuelle est de même ordre de grandeur (environ 30%) pour les stations de Katibougou, Djougou, Zoétéélé et Bomassa. Les concentrations interannuelles varient peu à Agoufou (13%) et à Lamto (18%). D'une façon générale, aucune tendance particulière n'est observée pour la variabilité interannuelle de HNO₃ dans chaque écosystème et sur le transect. L'évolution spatio-temporelle de HNO₃ dépend de plusieurs processus puisqu'il est essentiellement produit par oxydation de NO₂ dans l'atmosphère.

Les mesures des niveaux de concentrations ambiantes de HNO₃ sont rares, spécialement en zones tropicales. Gupta et al. (2003) ont mesuré une concentration moyenne

de 0,3 ppb de HNO_3 dans un site rural indien (Rampur). Ce niveau est comparable aux concentrations de HNO_3 obtenues pour les écosystèmes africains dans ce travail (0,3-0,5 ppb). Pour les sites d'Afrique du Sud, la valeur la plus élevée est observée à Amersfoort (0,9 ppb), savane sèche influencée par l'industrie, et la plus faible valeur à Louis Trichardt (0,2 ppb), comparable au site Zoétéélé en forêt (Tableau 3.1). Pour Cape Point, site côtière/continental, la concentration moyenne annuelle est de l'ordre de 0,5 ppb, similaire à celle des sites des savanes sèches de l'Afrique de l'Ouest.

3.2.3. L'ozone (O_3)

Les concentrations moyennes mensuelles de l'ozone troposphérique, sur une période de 5 à 7 ans, sont comprises entre $3,3 \pm 0,5$ ppb et $21 \pm 4,5$ ppb en savanes sèches, entre $6,9 \pm 1,0$ ppb et $16,8 \pm 6,2$ ppb en savanes humides et entre $2,8 \pm 0,8$ ppb et $7,3 \pm 1,7$ ppb en forêts. La figure 3.3(a,b,c) présente l'évolution mensuelle de l'ozone sur le transect savanes sèches, savanes humides et forêts. Le long du transect des écosystèmes, la tendance saisonnière de l'ozone est comparable à l'évolution saisonnière de NO_2 .

En savanes sèches, les concentrations moyennes saisonnières d' O_3 en saison humide ($16,8 \pm 5,2$ ppb à Banizoumbou, $14,8 \pm 3,9$ ppb à Katibougou et $17,3 \pm 4,8$ ppb à Agoufou) sont environ deux fois plus élevées que celles de la saison sèche ($7,9 \pm 1,9$ ppb à Banizoumbou, $10,2 \pm 1,7$ ppb à Katibougou et $6,8 \pm 2,1$ ppb à Agoufou).

En savanes humides, les concentrations moyennes saisonnières en saison sèche ($13,2 \pm 2,5$ ppb à Lamto et $15,6 \pm 3,7$ ppb à Djougou) sont comparables à celles de la saison humide des savanes sèches. En saison humide, les concentrations moyennes de l'ozone observées à Lamto et Djougou sont respectivement $9,1 \pm 1,1$ ppb et $12,5 \pm 2,2$ ppb.

Au niveau des deux sites forestiers, il y a peu ou pas de différence saisonnière dans les concentrations de l'ozone. Pour la forêt congolaise de Bomassa, les concentrations moyennes saisonnières sont $4,0 \pm 0,8$ ppb et $4,0 \pm 0,4$ ppb respectivement en saison humide et saison sèche. Pour Zoétéélé au Cameroun, nous mesurons des concentrations moyennes d'ozone de $7,2 \pm 1,1$ ppb en saison sèche et $4,1 \pm 0,9$ ppb en saison humide.

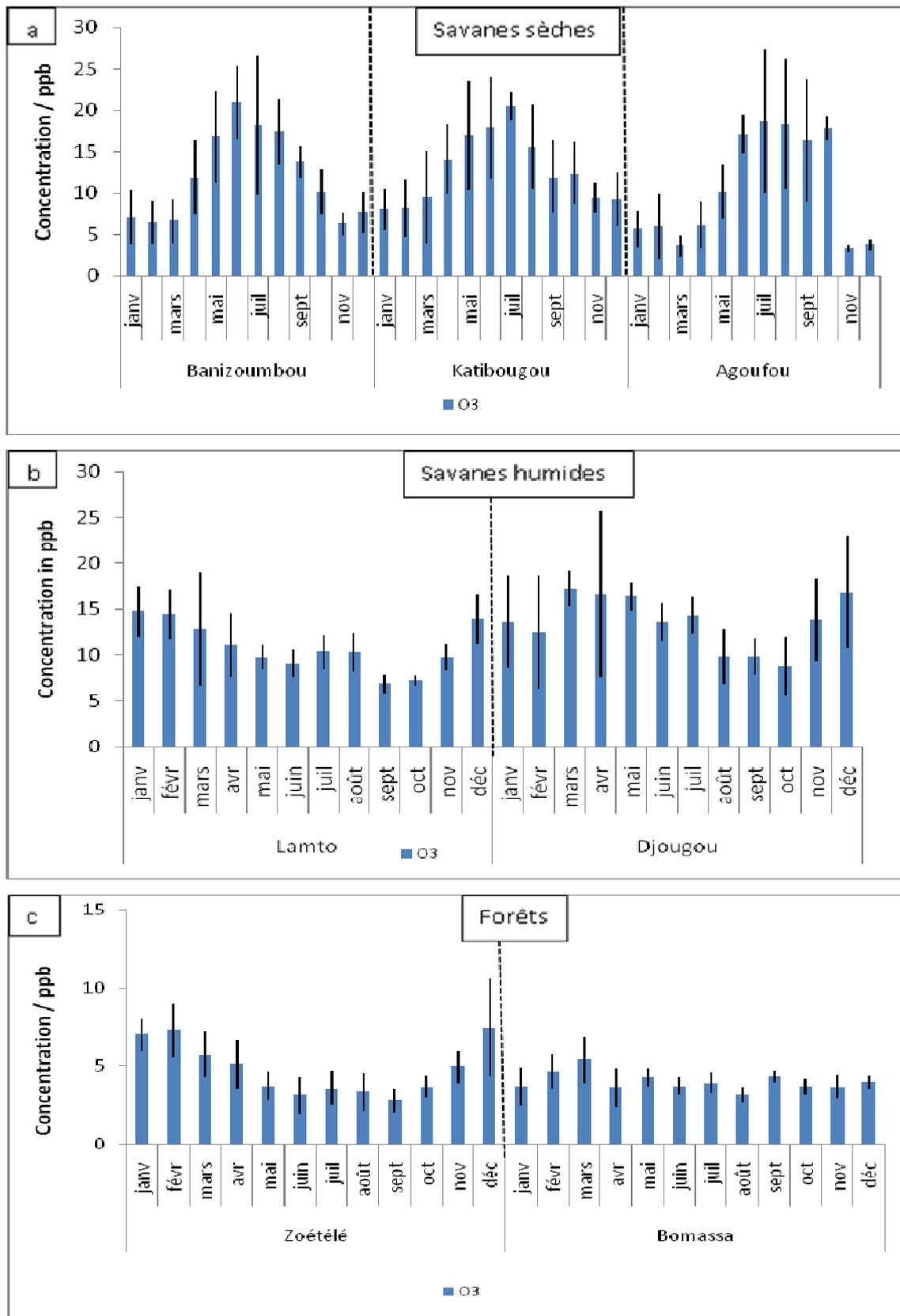


Figure 3.3 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes d'O₃ (2001-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).

Dans les savanes semi-arides, le cycle saisonnier de l'ozone est bien marqué, avec un maximum en Juin-Juillet, au cœur de la saison humide. Ceci est le résultat de la production photochimique de l'ozone dans la couche limite associée aux fortes concentrations des NO_x . Pendant l'expérience AMMA en saison humide, Stewart et al. (2008) ont estimé la production d'ozone dans le Sahel à un taux de $1 \text{ ppb}\cdot\text{h}^{-1}$, comme le résultat de fortes concentrations des NO_x dans la couche limite. En outre, les mesures aéroportées des concentrations des NO_x et de l'ozone aux basses altitudes pendant AMMA sur les transects présentent une bonne corrélation. La même corrélation est observée pour les mesures de gaz réalisées sur le réseau IDAF. La région du Sahel est un cas original d'étude pour la chimie atmosphérique où la production de l'ozone est principalement liée aux sources naturelles biogéniques des précurseurs. Les concentrations des gaz IDAF confirment aussi ce résultat.

Dans la savane humide de Lamto, les NO_x sont bien corrélées aux concentrations d' O_3 ($R^2=0.7$). Lamto est fortement influencé par la combustion de biomasse d'Afrique de l'Ouest et Centrale, de décembre à février (Lacaux et al., 1995), et n'est pas ou peu influencé par des sources d'émissions anthropiques. La production d'ozone y est conduite par un régime de NO_x -limité. A Lamto (savane humide), les feux apparaissent généralement en janvier, c'est-à-dire en plein saison sèche et environ 80% de la surface du sol de la savane est brûlée annuellement (Abbadie et al., 2006). La combustion de biomasse contribue ainsi de manière significative à la production d'ozone à travers les émissions de ses précurseurs (NO_x , CO). En effet, Liu et al. (1987) ont montré une plus grande efficacité de production d'ozone pour de faibles rapports de mélange de NO_x dans les sites ruraux. De même, Galanter et al. (2000) ont montré que de décembre à février, la combustion de biomasse contribue indirectement de 30 à 40 % aux concentrations d'ozone au dessus de l'Afrique du Nord et Equatoriale à 940 hPa.

Pour les écosystèmes forestiers africains, les concentrations d'ozone sont faibles. Les concentrations moyennes annuelles sont autour de 4 ppb (tableau 3.1). Ce résultat est cohérent avec les mesures faites par Cros et al. (1987) dans la forêt Mayombe du Congo. En dessous de la canopée, à une altitude de 3 m, les niveaux d' O_3 observés sont faibles, toujours inférieurs ou égaux à 5 ppb. Pour les deux sites forestiers et surtout à Zoétéle, le maximum d' O_3 est observé pendant la saison de combustion de biomasse dans ces écosystèmes ; ce qui est aussi cohérent avec les observations de Cros et al. (1992). Plusieurs études ont montré que les forêts tropicales apparaissent être un puits majeur d' O_3 , à travers les dépôts sur le sol et le feuillage et la perte par des réactions chimiques avec les hydrocarbures et les oxydes d'azotes (Rummel et al., 2007, Jacob and Wofsy, 1990; Bakwin et al., 1990, Kaplan et al., 1988). Ainsi, dans les forêts, toutes les couches de la végétation peuvent participer à la destruction de l'ozone par les

dépôts secs et les réactions chimiques (Cros et al., 2000). Saunois et al. (2009) ont montré à partir de mesures des vols FAAM BAe-146 qu'il existe un fort gradient d'ozone entre la forêt et le sol nu dans la couche limite en Afrique de l'Ouest. Ils ont observé une augmentation du rapport de mélange d'ozone du 25 ppbv au dessus de la zone forestière jusqu'à 40 ppbv au dessus de la zone sahélienne dans la basse troposphère d'Afrique de l'Ouest. Ils ont aussi trouvé que les faibles valeurs d'ozone au dessus de la végétation sont essentiellement contrôlées par le dépôt sec au dessus des arbres et que le maximum d'O₃ est manifestement une conséquence des rapports de mélange des NO_x plus élevés au nord de 12°N. Les mesures de surface d'IDAF tendent à confirmer ce fort gradient d'ozone entre les forêts (concentration moyenne saisonnière autour de 4 ppb) et les savanes sèches (autour de 16 ppb) pendant la saison humide. Des mesures ont aussi été conduites dans la forêt Amazonienne de la Guyane Française (Petit saut) où les observations d'ozone indiquent de faibles concentrations avec une moyenne annuelle de 4,6±0,7 ppb (de 2001-2007) (C. Galy-Lacaux, personal communication, 2009).

Les concentrations moyennes annuelles sont d'environ 11-14 ppb en savanes sèches et humides (11,9±2,3 ppb à Banizoumbou, 12,6±2,2 ppb à Katibougou and 11,4±2,2 ppb à Agoufou, 10,9±1,8 ppb à Lamto et 13,6±2,1 ppb à Djougou) et 4-5 ppb en forêts (4,8±1,0 ppb à Zoétéle et 4,0±0,4 à Bomassa). Les concentrations interannuelles sont présentées dans le tableau 3.4. Sur le transect et dans chaque écosystème, aucune tendance particulière n'est observée dans la variabilité interannuelle des concentrations d'ozone.

Les coefficients de variations sont compris entre 15 et 19% en savanes sèches et humides où les concentrations annuelles sont de même ordre de grandeur. La variabilité interannuelle est plus faible dans le site forestier de Bomassa (10%) où nous avons observé que les concentrations mensuelles sont pratiquement constantes (figure 3.3). La variabilité interannuelle à Zoétéle est de l'ordre de 21%. L'évolution spatio-temporelle de la distribution des concentrations d'ozone dépend de divers processus, puisque la production d'ozone est non linéairement dépendante de ses précurseurs (NO_x, COV) provenant de la combustion de biomasse, la combustion des combustibles fossiles, des sources biogéniques et des sols (Jacob et al., 1990, 1991, 1995). Sous les tropiques, en absence des sources anthropiques, la variation saisonnière d'O₃ dans la couche limite est principalement une conséquence des processus photochimiques et l'échange entre la troposphère libre et les surfaces terrestres.

Tableau 3.4 : Concentrations interannuelles d'O₃ (en ppb) dans les sites IDAF.

O ₃ (ppb)	Banizoumbou	Katibougou	Agoufou	Lamto	Djougou	Zoétélé	Bomassa
2001	12,2	10,9		11,2		3,6	3,7
2002	13,0	12,6		11,4		3,6	4,3
2003	13,4	13,7		11,0		4,5	4,0
2004	8,4	9,8		12,4		6,3	4,6
2005	15,1	15,5	14,9	12,4	15,7	5,6	
2006	11,0	14,9	9,7	11,0	15,6	5,2	3,5
2007	9,9	11,1	12,1	7,2	10,8	5,0	
2008			10,6		13,4		
2009			9,8		12,5		
Moyenne	11,9	12,6	11,4	10,9	13,6	4,8	4,0
Ecart type	2,3	2,2	2,2	1,8	2,1	1,0	0,4
*C.V. (%)	19	17	19	16	15	21	10

*CV : coefficient de variation.

Peu d'études observationnelles en surface d'O₃ sont disponibles en zones tropicales. Dans la région Indienne, Naja and Lal (2002) ont rapporté des concentrations moyennes mensuelles d'O₃ comprises entre 18,1 ± 10,8 ppbv (octobre) et 33,6 ± 20,6 ppb (mars) dans un site rural de Gadanki (13.5°N, 79.2°E) pendant la période de 1993-1996. Pour un site côtier rural du Sud de l'Inde, de Mai 1997 à Octobre 2000, Debaje et al. (2003) ont rapporté des concentrations moyennes d'O₃ allant de 17±7 ppbv (octobre) à 23±9 ppbv (mai) à Tranquebar (11°N, 79.9°E). L'augmentation d'O₃ était attribuée à l'augmentation des émissions des NO_x et d'autres précurseurs provenant des différentes sources à proximité de ce site. Les concentrations moyennes mensuelles d'O₃ mesurées dans les sites ruraux Indiens sont plus élevées que celles des sites ruraux Africains (2,8±0,8 ppb à 21 ±4,5 ppb sur le transect des écosystèmes, dans cette étude). Les concentrations moyennes annuelles en Afrique du Sud (27± 8,3 ppb à Amersfoort et Cape Point, 35±8,6 ppb à Louis Trichardt) sont plus de deux fois plus élevées que celles mesurées dans les écosystèmes de savanes sèches et humides (12 ppb) et de forêts (4 ppb) d'Afrique de l'Ouest et Centrale (tableau 3.1). Ceci est le résultat de la pollution industrielle, qui affecte directement tous les sites Sud Africains à cause de la circulation des masses d'air. Les niveaux très élevés d'ozone dans le site lointain de savane sèche de Louis Trichardt est aussi probablement due à une grande zone de mélange intercontinental des gaz précurseurs d'ozone (notamment : les composés volatils organiques provenant de la combustion de biomasse en Zambie et Zimbabwe, et NO₂ provenant des activités industrielles en Afrique du Sud) (Martins et al., 2007).

3.2.4. L'ammoniac (NH₃)

Les concentrations moyennes mensuelles de l'ammoniac atmosphérique, sur une période de 5 ou 10 ans, sont comprises entre $3,2 \pm 1,6$ ppb et $10,1 \pm 3,1$ ppb en savanes sèches, entre $2,2 \pm 0,9$ ppb et $7,3 \pm 2,8$ ppb en savanes humides et entre $2,9 \pm 1,0$ ppb et $7,2 \pm 4,3$ ppb en forêts. L'évolution mensuelle de NH₃ sur le transect des écosystèmes est représentée à la figure 3.4(a,b,c).

En savanes sèches, les concentrations moyennes de NH₃ en saison humide sont : $7,7 \pm 2,5$ ppb à Banizoumbou, $8,1 \pm 1,9$ ppb à Katibougou et $8,2 \pm 1,0$ ppb à Agoufou. En saison sèche, de faibles concentrations moyennes sont mesurées: $5,3 \pm 1,6$ ppb à Banizoumbou, $5,5 \pm 1,1$ ppb à Katibougou et $6,4 \pm 1,0$ ppb à Agoufou. En savanes humides, le phénomène inverse est observé, les faibles concentrations moyennes de NH₃ sont mesurées en saison humide ($3,0 \pm 1,0$ ppb à Lamto et $3,0 \pm 1,2$ ppb à Djougou) et les fortes concentrations moyennes en saison sèche ($5,2 \pm 1,5$ ppb à Lamto et $4,8 \pm 1,3$ ppb à Djougou). En forêts, aucune différence significative entre les deux saisons n'existe. Les concentrations moyennes saisonnières de NH₃ sont $4,1 \pm 1,0$ ppb et $4,4 \pm 1,4$ ppb à Zoétélé, et $4,6 \pm 1,6$ ppb et $5,1 \pm 2,2$ ppb à Bomassa, respectivement en saison humide et saison sèche. Nous notons que les écosystèmes savanes humides et forêts présentent des concentrations saisonnières de même ordre de grandeur.

Nous observons sur le transect (figure 3.4) que, de janvier en mars (saison sèche), les concentrations moyennes mensuelles de NH₃ dans les écosystèmes savanes humides et forêts sont supérieures à 4 ppb (5-7 ppb). Sur la même période, les concentrations de NH₃ sont faibles en savanes sèches de l'ordre de 4 ppb, à l'exception d'Agoufou. Ensuite, de mai à la fin de la saison humide, nous observons de fortes concentrations en savanes sèches, de 5 à 10 ppb. Dans la période 1990-1991, les concentrations de NH₃ ont été mesurées à Lamto par Ferm et Rodhe (1997). Les concentrations de NH₃ de l'ordre de 2 à 3 ppb étaient observées en Septembre-Octobre en 1990 et 5 à 7 ppb en Janvier-Février (1991). Ces mesures sont cohérentes avec celle d'IDAF.

La décomposition bactérienne de l'urée dans les excréments d'animaux et les émissions des sols fertilisés ou naturels font partie des principales sources de l'ammoniac atmosphérique (Schlesinger and Hartley, 1992 ; Bouwman et al., 2002). En régions tropicales, une autre source importante de l'ammoniac est représentée par les feux de savane et les bois de chauffage domestique (Lobert et al., 1990; Delmas et al., 1995; Brocard et al, 1996).

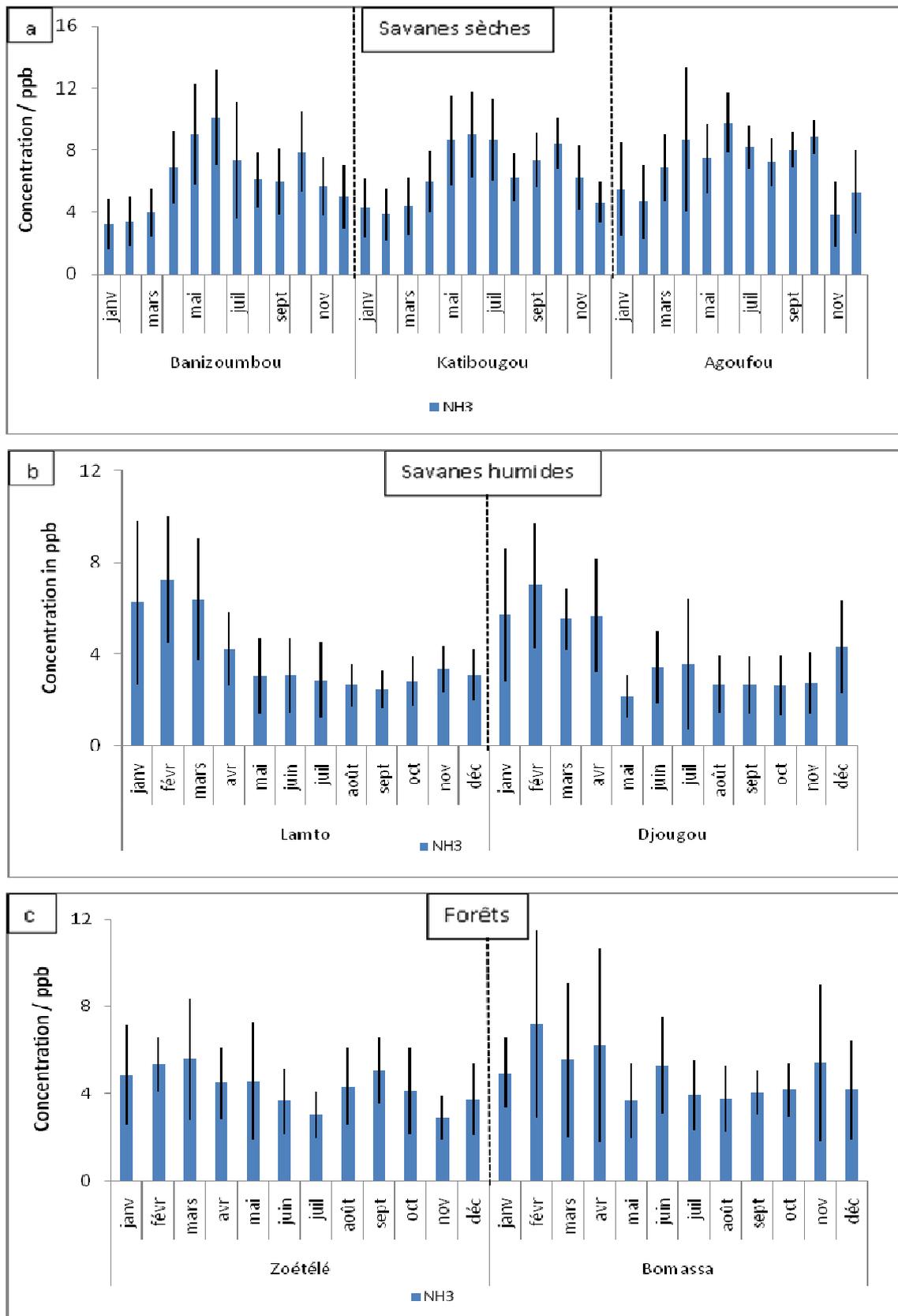


Figure 3.4 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes de NH_3 (1998-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).

Pour les sites ruraux naturels du réseau IDAF, les sources industrielles d'azote et les émissions azotées provenant de l'utilisation de fertilisants sont négligeables (Potter et al., 2010). Dans les écosystèmes de savanes humides et de forêts, les concentrations de NH_3 représentent une combinaison de toutes les sources naturelles avec une large contribution des sources de combustion de biomasse, comme le montre les fortes concentrations observées en saison sèche (figure 3.4). Dans un site rural du bassin Amazonien, Trebs et al. (2004) ont mesuré un rapport de mélange de NH_3 de 8 ppb pendant la saison des feux, 3 fois plus élevé qu'en saison humide. Ce résultat est bien comparable aux concentrations mesurées en saison sèche dans les écosystèmes de savanes humides et de forêts d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Pendant la saison humide dans la région Sahélienne, les feux de savane sont improbables et la principale source de l'ammoniac est vraisemblablement l'hydrolyse de l'urée à partir des urines des animaux déposées dans les zones de pâturage. Les fortes densités d'animaux domestiques sont concentrées sur les pâturages naturels frais qui demeurent verdoyant pendant la saison humide. McCalley et al. (2008) ont mesuré les émissions de NO et NH_3 dans les sols désertiques de Mojave. Les résultats indiquent que les changements saisonniers des températures et des précipitations entraînent des émissions, avec des flux maximums en saison humide autour de $0,9$ à $10 \text{ ng N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (soit de $0,3$ à $3 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$). Au Niger, Modi et al. (1995) ont estimé les émissions de NH_3 de $0,5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, représentant un flux de $3,1 \text{ mmol m}^{-2} \text{ an}^{-1}$. La forte valeur de dépôt humide d'ammonium (NH_4^+) ($6,3 \text{ mmole m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) estimée à Banizoumbou par Galy-Lacaux and Modi (1998) confirme l'importance de la source d'ammoniac dans cette savane semi-aride. Les flux d'ammoniac atmosphérique ont été estimés au Sahel et plus généralement en Afrique (Schlecht et al., 1998, Bouwman et al., 2002). Dans la zone sahélienne, l'agro pastoralisme semble être très important, représentant 25 à 30% du PIB (Produit Intérieur Brut). Le pastoralisme contribue de 10 à 15% du PIB du Mali et du Niger par exemple. Il est important de noter que le pastoralisme est principalement nomade. Récemment, Delon et al. (2010) ont estimé, à partir des excréments d'animaux domestiques, les émissions de NH_3 dans les 3 sites sahéliens IDAF pour l'année 2006. Les flux moyens annuels N- NH_3 émis par volatilisation sont compris entre 3 et $6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Katibougou et entre 7 et $12 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Agoufou et Banizoumbou. Nous supposons donc que les animaux domestiques représentent la principale source de NH_3 dans ces écosystèmes semi-arides.

Les concentrations interannuelles sont présentées dans le tableau 3.5, pour tous les sites IDAF. Les concentrations moyennes annuelles de l'ammoniac en savanes sèches sont $6,3 \pm 2,0$ ppb à Banizoumbou, $6,6 \pm 1,0$ ppb à Katibougou et $7,3 \pm 0,8$ ppb à Agoufou (avec une

variabilité interannuelle respectivement de 31%, 15% et 12%). Ces valeurs sont plus élevées que celles mesurées dans les autres écosystèmes: $4,0 \pm 1,2$ à Lamto et $3,7 \pm 1,1$ ppb à Djougou (savanes humides); $4,2 \pm 0,9$ ppb à Zoétéélé et $4,7 \pm 1,7$ à Bomassa (forêts). La variabilité interannuelle sur la période d'étude est de 29%, 31%, 22% et 35% respectivement à Lamto, Djougou, Zoétéélé et Bomassa. Les concentrations moyennes annuelles de NH_3 sont de même ordre de grandeur en savanes humides et en forêts (environ 4 ppb).

Tableau 3.5 : Concentrations interannuelles de NH_3 (en ppb) dans les sites IDAF.

NH_3 (ppb)	Banizoumbou	Katibougou	Agoufou	Lamto	Djougou	Zoétéélé	Bomassa
1998	2,6	6,9		5,4		4,6	4,7
1999	4,1	5,4		3,0		5,3	2,9
2000	6,4	7,9		4,0		4,0	6,5
2001	8,7	7,0		4,2		4,4	6,2
2002	9,1	7,6		5,5		5,5	7,0
2003	6,6	5,6		2,4		2,7	2,6
2004	5,1	5,0		2,6		2,6	4,3
2005	7,4	6,8	8,3	3,1	3,0	4,0	
2006	6,4	6,1	7,0	4,8	3,2	4,5	3,7
2007	7,1	7,4	6,9	5,0	5,5	4,5	
2008			8,0		4,2		
2009			6,2		2,7		
Moyenne	6,3	6,6	7,3	4,0	3,7	4,2	4,7
Ecart type	2,0	1,0	0,8	1,2	1,1	0,9	1,7
*C.V. (%)	31	15	12	29	31	22	35

*CV : coefficient de variation.

Aucune tendance spécifique dans la variabilité interannuelle n'est observée sur le transect des écosystèmes. Toutefois, à Banizoumbou, nous remarquons une augmentation progressive de NH_3 de 2,6 ppb en 1998 à 9,1 ppb en 2002.

Pour les écosystèmes de savanes sèches, les concentrations moyennes annuelles de NH_3 en Afrique de l'Ouest sont cinq fois plus élevées que celles mesurées dans les sites d'Afrique du Sud ($1,2 \pm 0,7$ ppb à Amersfoort et à Louis Trichardt, $1,5 \pm 0,7$ ppb à Cape Point) (tableau 3.1). Ceci pourrait s'expliquer par le fait que ces régions de l'Afrique de l'Ouest sont des zones pastorales ; par conséquent une émission importante par volatilisation de NH_3 à partir des excréments d'animaux. Les concentrations moyennes annuelles de l'ammoniac demeurent aussi élevées en savanes humides et en forêts (autour de 4 ppb). Carmichael et al. (2003) ont constaté que les niveaux ambiants d'ammoniac sont élevés dans le sous-continent Indien, le Sud-Est et le Sud de l'Asie et en Afrique. Ces concentrations reflètent la forte

émission de NH_3 à partir des activités agricoles, l'élevage et l'utilisation des biocarburants. Tout récemment, Meng et al. (2010) ont mesuré les concentrations de NH_3 et d'autres gaz (SO_2 , NO_2) par les capteurs passifs (sur une base mensuelle) dans dix sites ruraux, situés dans 9 provinces de Chine. Les concentrations moyennes annuelles de NH_3 sur une période de deux ans (2007-2008) sont comprises entre $2,8 \pm 3,0$ ppb à Shangdianzi dans le Nord-est de Beijing à $13,7 \pm 8,4$ ppb à Houma. Ces valeurs sont bien comparables aux concentrations de NH_3 mesurées sur le transect des écosystèmes africains (de $3,7 \pm 1,1$ ppb à $7,3 \pm 0,8$ ppb) dans cette étude. Toutefois, les concentrations de NH_3 mesurées dans certains sites ruraux de Chine (Houma et Huaian) sont assez élevées, de l'ordre de 14 ppb.

3.2.5. Le dioxyde de soufre (SO_2)

Les concentrations moyennes mensuelles de SO_2 , sur une période de 5 ou 6 ans, varient de $0,2 \pm 0,1$ ppb à $1,0 \pm 0,7$ ppb en savanes sèches ; de $0,3 \pm 0,2$ ppb à $1,5 \pm 0,8$ ppb en savanes humides et de $0,2 \pm 0,1$ ppb à $0,7 \pm 0,4$ ppb en forêts. L'évolution mensuelle de SO_2 sur le transect des écosystèmes est représentée à la figure 3.5(a,b,c).

En général, nous mesurons de faibles concentrations du dioxyde de soufre sur le transect savanes sèches – savanes humides – forêts et les valeurs inter- mensuelles varient fortement, comme le montre les écart-types (figure 3.5). Si nous considérons les saisons, les concentrations moyennes de SO_2 sur le transect sont $0,8 \pm 0,3$ ppb, $0,6 \pm 0,2$ ppb, $0,3 \pm 0,2$ ppb en saison humide, et $0,5 \pm 0,2$ ppb, $0,7 \pm 0,4$ ppb, $0,4 \pm 0,2$ ppb en saison sèche, respectivement pour les écosystèmes savanes sèches, savanes humides et forêts. Nous observons le même ordre de grandeur de SO_2 entre les saisons sèche et humide dans chaque écosystème, avec une valeur plus élevée en saison humide pour les savanes sèches. Ces résultats suggèrent une contribution des émissions du sol et des sources de combustion de biomasse. Bien que les sols ont été longtemps reconnus comme puits de SO_2 (Garland, 1977), il a été suggéré que les sols sulfatés acides peuvent en fait émettre du SO_2 (Van Breemen, 1982, 1993). Le dioxyde de Soufre (SO_2) peut également être généré à travers des réactions impliquant le sulfite dissous (SO_3^{2-}) (Barnett and Davis, 1983), qui apparaît naturellement dans les sols. Macdonald et al. (2004) ont montré que les sols sulfatés acides contenant les sulfures partiellement oxydés sont une source de SO_2 atmosphérique, et que l'évolution de SO_2 semble être liée à l'évaporation de la surface du sol. En outre, la combustion de biomasse (combustion des forêts, des prairies, des déchets agricoles) est une source importante de SO_2 dans l'atmosphère (Bates et al., 1992; Arndt et al., 1997). Cependant, la teneur de la

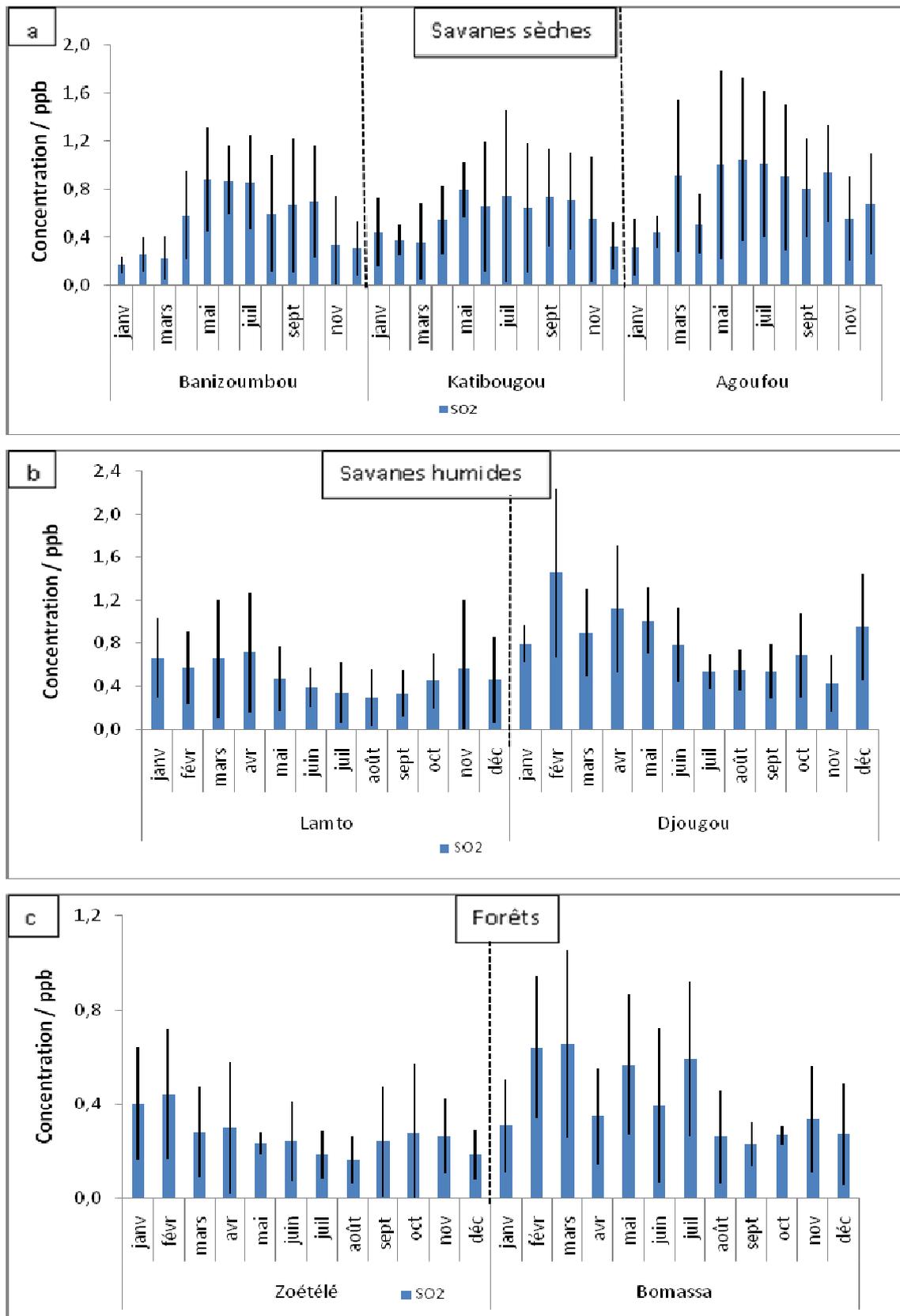


Figure 3.5 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes de SO₂ (2002-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).

végétation en soufre est faible comparée aux éléments de carbone et d'azote, et les facteurs d'émission de SO₂ pour les processus de combustion sont plus faibles que celles des espèces carbonées et azotées (Lacaux et al., 1995).

Les concentrations moyennes annuelles de SO₂ sont faibles pour tous les sites IDAF excepté Amersfoort (tableau 3.1). Pour les sites d'Afrique de l'Ouest et Centrale, les concentrations moyennes annuelles de SO₂ sont de même ordre de grandeur en savanes sèches (0,6 ± 0,2 ppb à Banizoumbou et Katibougou, 0,8±0,3 ppb à Agoufou) et en savanes humides (0,5±0,2 ppb à Lamto et 0,8±0,3 ppb à Djougou). Pour les écosystèmes forestiers, les concentrations moyennes annuelles de SO₂ sont deux fois plus faibles (0,3±0,1ppb à Zoétéélé et 0,4±0,2ppb à Bomassa). Pour les sites d'Afrique du Sud, la forte concentration moyenne annuelle de SO₂ mesurée à Amersfoort (2,8± 1,1 ppb) est liée aux activités anthropiques du Highveld, zone très industrialisée (Martins et al., 2007). Pour les deux autres sites sud africains, les concentrations moyennes annuelles de SO₂ sont 0,8±0,7 ppb à Louis Trichardt et 0,7±0,4 ppb à Cape Point, du même ordre de grandeur que celles mesurées dans les sites des savanes d'Afrique de l'Ouest. Les concentrations interannuelles de SO₂ pour les sites d'Afrique de l'Ouest et Centrale sont présentées dans le tableau (3.6). Nous remarquons une forte variabilité interannuelle de SO₂ entre 34 et 47% pour tous les sites de mesure.

Tableau 3.6 : Concentrations interannuelles de SO₂ (en ppb) dans les sites IDAF.

SO ₂ (ppb)	Banizoumbou	Katibougou	Agoufou	Lamto	Djougou	Zoétéélé	Bomassa
2002	0,3	0,4		0,4		0,2	0,5
2003	0,8	0,8		0,8		0,4	0,5
2004	0,4	0,4		0,3		0,2	0,1
2005	0,5	0,4	0,7	0,5	0,5	0,3	
2006	0,6	0,8	1,1	0,3	0,7	0,1	0,5
2007	0,7	0,6	1,1	0,8	1,2	0,4	
2008			0,5		0,9		
2009			0,4		0,6		
Moyenne	0,6	0,6	0,8	0,5	0,8	0,3	0,4
Ecart type	0,2	0,2	0,3	0,2	0,3	0,1	0,2
C.V.(%)	34	38	40	46	34	47	47

*CV : coefficient de variation.

Aucune tendance n'a été observée dans la variabilité interannuelle des concentrations de SO₂ dans chaque écosystème et sur le transect.

En Chine, Meng et al. (2010) ont mesuré les concentrations mensuelles de SO₂ par la méthode des capteurs passifs dans 10 sites ruraux sur la période 2007-2008. Les

concentrations moyennes annuelles de SO₂ varient de 0,7 ±0,4 ppb au niveau du site reculé de Waliguan à 67,3 ±31,1 ppb à Kaili dans la province de Guizhou. Les résultats ont montré de grandes variations géographiques et saisonnières des concentrations. Seules les concentrations de SO₂ mesurées sur le site reculé de Waliguan sont de même ordre de grandeur que celles mesurées sur le transect des écosystèmes africains (de 0,3 à 0,8 ppb) dans le cadre du réseau IDAF. Pour les autres sites ruraux de Chine, les concentrations sont beaucoup plus élevées ; par exemple pour l'année 2007, elles sont comprises entre 2,6 ±2,5 ppb et 72,3 ±25,0 ppb.

Le dioxyde de soufre et l'ammoniac jouent un rôle important dans les processus de formation d'aérosols, en plus de leur influence dans l'acidité des précipitations. Il est intéressant de noter que le rapport de mélange de NH₃/SO₂ dépasse 10 pour les écosystèmes forestiers (14 à Zoétéélé, 12 à Bomassa) et les savanes sèches (11 à Banizoumbou et Katibougou) excepté Agoufou (9). Pour les savanes humides, un rapport de 8 et 5 est observé respectivement à Lamto et à Djougou. Ces résultats sont cohérents avec ceux rapportés par Carmichael et al. (2003) pour 24 sites ruraux lointains dans le monde entier, pour lesquels le rapport (ratio) pour 15 sites dépasse 10 et un rapport <1 n'était observé pour aucun des sites. Pour les sites Sud Africains, nous notons plutôt de faible rapport de mélange de 1,46 et 2,73 observé respectivement à Louis Trichardt et Cape Point, alors qu'un rapport de 0,42 est observé à Amersfoort (Martins et al., 2007).

3.3. Conclusion

Cette étude rapporte, pour la première fois, les mesures des concentrations de NO₂, HNO₃, NH₃, O₃, et SO₂ dans sept sites reculés en Afrique de l'Ouest et Centrale, dans le cadre du réseau de mesure IDAF. Les sites sont représentatifs d'un transect d'écosystèmes : savane sèche –savane humide – forêt. Les mesures mensuelles des concentrations ont été obtenues en utilisant un ensemble de capteurs passifs IDAF sur une période de dix ans de 1998 à 2007 (ou cinq ans pour deux des sites, 2005-2009). Les études de validation et d'inter-comparaison conduites avec les capteurs passifs IDAF, résumées dans le chapitre 2 (Adon et al., 2010), assurent la précision et la qualité de ces mesures. La base de données IDAF obtenue pour les gaz est disponible sur le site : <http://idaf.sedoo.fr> . La reproductibilité des capteurs passifs IDAF a été estimée à 9,8%, 20%, 14,3%, 10% et 16,6% pour respectivement NO₂, HNO₃, NH₃, O₃, et SO₂. Pour chaque type d'écosystème, nous avons étudié les séries de données à

long terme pour caractériser les niveaux des concentrations des gaz en surface, et pour documenter les cycles saisonniers selon les sources atmosphériques des gaz. Nous avons également comparé les concentrations des gaz obtenues dans les écosystèmes d'Afrique de l'Ouest et Centrale avec les résultats obtenus dans d'autres parties du monde telles que l'Afrique du Sud, l'Asie et l'Inde.

Dans notre étude, nous avons constaté que pour tous les gaz mesurés, les concentrations saisonnières étaient plus élevées en savanes sèches pendant la saison humide. En revanche, les concentrations étaient plus élevées en savanes humides pendant la saison sèche. En forêts, aucune différence significative entre les saisons sèche et humide n'a été observée. Le long du transect d'écosystèmes, la variabilité de NO_2 met en évidence l'importance de deux principales sources des NO_x , c'est-à-dire, la combustion de biomasse et les émissions biogéniques par les sols. Les mesures IDAF tendent à démontrer que la combustion de biomasse en saison sèche dans les écosystèmes de savane humide et de forêt conduit à des concentrations de NO_2 de 1,1 à 2,2 ppb. Ces concentrations sont de même ordre de grandeur que celles des sources biogéniques des sols des NO_x pendant la saison humide dans les écosystèmes de savanes sèches semi-aride et aride (2,1 à 3,1 ppb pour NO_2).

L'évolution mensuelle de HNO_3 est comparable à celle de NO_2 . De fortes concentrations de HNO_3 en savanes sèches pendant la saison humide (0,5-1 ppb) peuvent être expliquées par la production croissante de HNO_3 à partir des gaz précurseurs (NO_x) soumis à une forte activité photochimique.

Les mesures IDAF soulignent que les concentrations d' O_3 en savanes sèches pendant la saison humide varient de $14,8 \pm 3,9$ à $17,3 \pm 4,8$ ppb, et sont de même ordre de grandeur que celles observées en savanes humides pendant la saison sèche, qui sont comprises entre $13,2 \pm 2,5$ et $15,6 \pm 3,7$ ppb. La saisonnalité nette mesurée avec les capteurs passifs IDAF en savanes semi-arides nous permet d'argumenter en faveur d'une production d'ozone liée aux NO_x . Les émissions biogéniques sont probablement le principal contributeur à la production d'ozone, à travers les émissions des NO_x comme précurseurs, pendant la saison humide dans les régions de savanes sèches et la combustion de biomasse pendant la saison sèche dans les régions de savanes humides. Dans les écosystèmes forestiers, les faibles concentrations d' O_3 mesurées à la fois en saison sèche et en saison humide (4-7 ppb) indiquent que les forêts tropicales semblent être un puits important d' O_3 .

Pour NH_3 , les fortes concentrations mesurées pendant la saison humide en savanes semi-arides (7.5-8.5 ppb) sont principalement liées à la source animale (l'hydrolyse de l'urée) dans les zones de pâturage. Il est à noter que le transect des écosystèmes présente une

concentration moyenne saisonnière de NH_3 de même ordre de grandeur (environ 5 ppb) en saison sèche.

Les concentrations moyennes annuelles de NH_3 , NO_2 et HNO_3 mesurées dans les savanes sèches sont plus élevées que celles mesurées dans les savanes humides et forêts, qui ont toutes deux des concentrations comparables. Les concentrations annuelles de NH_3 sont autour de 6-7.5 ppb en savanes sèches et 4-5 ppb en savanes humides et forêts. Les concentrations annuelles de NO_2 sont autour de 2-2,5 ppb en savanes sèches et 1 ppb en savanes humides et forêts, tandis que les concentrations annuelles de HNO_3 sont autour de 0,5 ppb en savanes sèches et 0,3 ppb en savanes humides et forêts. Les concentrations moyennes annuelles d' O_3 et SO_2 sont faibles pour tous les écosystèmes africains étudiés. Les concentrations moyennes annuelles d' O_3 sont autour de 11-14 ppb en savanes sèches et humides et 4-5 ppb en forêts, et SO_2 autour de 0,5-1 ppb en savanes sèches et humides et 0,3 ppb en forêts.

Les résultats de cette étude ont démontré que les capteurs passifs sont appropriés pour le suivi long terme et la mesure des concentrations de gaz sur des sites reculés. Le faible coût associé à ces mesures signifie que des données de bonne qualité couvrant de vastes régions du monde peuvent être obtenues facilement. Les sites reculés IDAF ne sont pas encore touchés par des sources anthropiques de gaz et de particules. Ce suivi se poursuit afin d'étudier les modifications de l'amplitude des sources. On estime que dans les prochaines décennies la pression démographique sera plus importante dans ces régions avec une utilisation croissante de fertilisants ; ce qui induira une forte augmentation des émissions des gaz et particules. Ces mesures ont été implémentées dans des villes africaines (Dakar, Bamako) dans le cadre du programme POLCA (POLlution de Capitales Africaines).

3.4. Article: Long term measurement of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in Africa using passive sampler (Adon et al., 2010).

Tous les résultats discutés dans ce chapitre ont fait l'objet d'une publication dans la session AMMA dans le journal *Atmospheric chemistry and Physics*. Cet article est le premier sur la base de données gaz IDAF ; il a permis de présenter la fiabilité et la validation de nos mesures par capteurs passifs.

La copie de la première page de cet article est donnée à la page qui suit.

J'ai présenté ce travail dans un oral lors de la conférence internationale AMMA à Ouagadougou (Juillet 2009), grâce à un financement IGAC.

Long term measurements of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in Africa using passive samplers

M. Adon^{1,2}, C. Galy-Lacaux¹, V. Yoboué², C. Delon¹, J. P. Lacaux¹, P. Castera¹, E. Gardrat¹, J. Pienaar³, H. Al Ourabi⁴, D. Laouali⁵, B. Diop⁶, L. Sigha-Nkamdjou⁷, A. Akpo⁸, J. P. Tathy⁹, F. Lavenu¹⁰, and E. Mougin¹¹

¹Laboratoire d'Aérodologie, UMR 5560, Université Paul-Sabatier (UPS) and CNRS, Toulouse, France

²Laboratoire de Physique de l'Atmosphère, Université de Cocody, Abidjan, Côte d'Ivoire

³School of Chemistry, North-West University, Potchefstroom 2520, South Africa

⁴Département de Physique, Université d'Alep, Alep, Syria

⁵Département de Physique, Université Abdou Moumouni, Faculté des Sciences, Niamey, Niger

⁶Département de Physique, Université de Bamako, Bamako, Mali

⁷Centre de Recherches Hydrologiques, Yaoundé, Cameroon

⁸Département de physique, Université Abomey Calavi, Cotonou, Benin

⁹Direction Générale de la Recherche Scientifique et Technologique, Brazzaville, Congo

¹⁰Centre d'études spatiales de la biosphère, UMR 5126, Toulouse, France

¹¹Laboratoire des Mécanismes et Transferts en Géologie, UMR 5563 UR154 UPS/CNRS/IRD, Toulouse, France

Received: 18 December 2009 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 12 February 2010

Revised: 9 July 2010 – Accepted: 26 July 2010 – Published: 10 August 2010

Abstract. In this paper we present the long term monitoring of ambient gaseous concentrations within the framework of the IDAF (IGAC-DEBITS-AFRICA) program. This study proposes for the first time an analysis of long-term inorganic gas concentrations (1998 to 2007) of SO₂, NO₂, HNO₃, NH₃ and O₃, determined using passive samplers at seven remote sites in West and Central Africa. Sites are representative of several African ecosystems and are located along a transect from dry savannas-wet savannas-forests with sites at Bani-zoumbou (Niger), Katibougou and Agoufou (Mali), Djougou (Benin), Lamto (Côte d'Ivoire), Zoetele (Cameroon) and Bomassa (Congo). The strict control of measurement techniques as well as the validation and inter-comparison studies conducted with the IDAF passive samplers assure the quality and accuracy of the measurements. For each type of African ecosystem, the long term data series have been studied to document the levels of surface gaseous concentrations. The seasonal and interannual variability have also been analyzed as a function of emission source variations. We compared the measured West and Central African gas

concentrations to results obtained in other parts of the world. Results show that the annual mean concentrations of NO₂, NH₃, HNO₃ measured in dry savannas are higher than those measured in wet savannas and forests that have quite similar concentrations. Annual mean NO₂ concentrations vary from 0.9±0.2 in forests to 2.4±0.4 ppb in the dry savannas, NH₃ from 3.9±1.4 to 7.4±0.8 ppb and HNO₃ from 0.2±0.1 to 0.5±0.2 ppb. Annual mean O₃ and SO₂ concentrations are lower for all ecosystems and range from 4.0±0.4 to 14.0±2.8 and from 0.3±0.1 to 1.0±0.2 ppb, respectively. A focus on the processes involved in gas emissions from dry savannas is presented in this work, providing explanations for the high concentrations of all gases measured at the three dry savannas sites. At these sites, seasonal concentrations of all gases are higher in the wet season. Conversely, concentrations are higher in the dry season in the wet savannas. In forested regions, we measure no significant difference between wet and dry seasons. This unique database of long term gases concentrations monitoring is available at: <http://medias.obs-mip.fr/idaf/>.



Correspondence to: M. Adon
(adonatma@yahoo.fr)

Chapitre 4 :

Estimation des flux de dépôt sec des gaz

Sommaire

4.1. Estimation de la vitesse de dépôt sec par le modèle big leaf de Zhang et al. (2003b)	
.....	107
4.1.1. Validité des paramètres d'entrée pour les sites IDAF.....	107
4.1.2. Sensibilité du modèle à certains paramètres d'entrées.....	115
4.1.3. Résultats des simulations des vitesses de dépôt sec des gaz.....	124
4.2. Résultats des estimations des flux de dépôt sec	131
4.2.1. Flux de dépôt sec des gaz azotés (NO ₂ , HNO ₃ et NH ₃).....	132
4.2.2. Flux de dépôt sec d'ozone (O ₃).....	145
4.2.3. Flux de dépôt sec du dioxyde de soufre (SO ₂).....	147
4.3. Incertitudes dans l'estimation des flux de dépôt sec	152
4.4. Conclusion	153

Le chapitre 4 a pour objectif principal l'estimation des flux de dépôt sec des gaz représentatifs des principaux écosystèmes africains. Dans le cadre du programme IDAF, disposant des mesures à long terme des concentrations des gaz, nous avons adopté la méthode inférentielle décrite dans le chapitre 2 pour estimer les flux de dépôt sec. Dans ce chapitre, nous allons dans un premier temps, utiliser le modèle de dépôt sec de Zhang et al. (2003b) (paramétrisations décrites dans le chapitre 2) pour simuler les vitesses de dépôt sec des gaz (SO_2 , O_3 , NO_2 , NH_3 , HNO_3) dans chaque écosystème. Puis, nous utiliserons les vitesses de dépôt calculées par modélisation et les concentrations des gaz mesurées (chapitre 3) pour estimer les flux de dépôt sec des gaz sur le transect d'écosystèmes savanes sèches-savanes humides-forêts.

4.1. Estimation de la vitesse de dépôt sec par le modèle big leaf de Zhang et al. (2003b)

Pour simuler les vitesses de dépôt sec, nous avons utilisé le modèle de dépôt « big-leaf » de Zhang et al. (2003b) (référéncé comme Zhang03). Ce modèle a été adapté aux conditions de simulation représentatives des sites IDAF à travers le choix de paramètres d'entrée pertinents et en accord avec les résultats établis lors de tests de sensibilité. En effet, les types de végétations décrites dans Zhang et al. (2003b), constitués généralement d'une seule couche de végétation, représentent mal les biomes africains surtout en savanes. De plus nous avons considéré les données biophysiques et météorologiques spécifiques aux sites IDAF et adapté approximativement les paramètres physiologiques des plantes aux biomes africains. Toutes ces données constituent les paramètres d'entrée du modèle de Zhang03 et leur validité est indispensable dans l'estimation des vitesses de dépôt sec représentatives d'un écosystème et d'un site.

4.1.1. Validité des paramètres d'entrée pour les sites IDAF

Les principaux paramètres d'entrée du modèle de Zhang03 peuvent être classés en trois groupes : les données biophysiques, météorologiques et physiologiques.

- **Les données biophysiques : LAI**

L'indice de surface foliaire, noté LAI (Leaf Area Index), représente la quantité de surface de feuille par surface au sol. Le LAI est un paramètre important dans le calcul des résistances du

couvert végétal (R_{st} , R_{cut} , R_{ac}). Pour les sites IDAF, les LAI ont été obtenus à partir des données du satellite MODIS (MODerate Resolution Imaging Spectroradiometer) à une résolution spatiale au kilomètre (km). Les données MODIS, couvrant la période 2000-2007, ont été obtenues à partir du « Distributive Active Archive Center » (DAAC), serveur hébergé par la NASA. Le LAI MODIS est défini comme le ratio de la surface foliaire par unité horizontale surfacique (Myneni et al., 1999). Il est obtenu sur une période de 8 jours. La qualité des produits MODIS de LAI (et d'albédo) a été vérifiée à l'aide de comparaison avec des mesures in-situ sur de nombreux sites de la région ouest africaine (Carrer et al., 2010 ; Fensholt et al., 2004 ; Samain et al., 2008 ; Mougin et al., 2009).

Les LAI MODIS mensuels ont été calculés pour chaque année sur une période de huit ans, soit 2000-2007, puis moyennés sur cette période pour avoir les LAI mensuels (octaux) caractéristiques de chaque type de végétation. Les variations mensuelles des LAI moyennés sur 8 ans pour chaque site IDAF sont représentées sur la figure 4.1 (a,b,c). Pour les sites des forêts, nous avons ajouté sur la figure (4.1c) les LAI maximums car pour cet écosystème, une valeur constante de LAI est souvent choisie.

Zhang et al. (2003b) ont adopté une valeur constante de 6 alors que Brook et al., (1999a) une valeur de 4.5 pour le LAI de forêts tropicales. Pour le site de Zoétéélé en forêt, les LAI moyens varient autour de 4 et les maximums autour de 5. Pour le site de Bomassa au Congo les LAI moyens sont autour de 5 et les maximums autour de 6 (figure 4.1c). Pour nos simulations de vitesses de dépôt sec au niveau de ces sites, nous avons utilisé un LAI moyen égal à 5 à la suite de tests de sensibilité (voir paragraphe 4.1.2 de ce chapitre). Une forte saisonnalité est observée pour les savanes. Pour ces surfaces, à l'exception d'évènements tels que les feux de brousse, le paysage du LAI suit bien la distribution de l'occupation des sols avec des valeurs élevées pour la végétation ligneuse et de faibles valeurs pour les herbacées. La variabilité intra-annuelle offre une réponse aux conditions environnementales (température, précipitation, topographie) (Kaptué, 2010). De fortes valeurs de l'écart-type des LAI mensuels sont observées sur le site de Lamto (savane humide) et en forêts.

Nous avons pu réaliser une comparaison entre les LAI MODIS des sites spécifiques IDAF présentés en annexe II du manuscrit et ceux des zones régionales correspondantes sur la carte de la végétation ECOCLIMAP II (Kaptué et al. 2010). Cette comparaison a confirmé la validité des LAI utilisés pour les simulations de calcul de vitesse de dépôt sec.

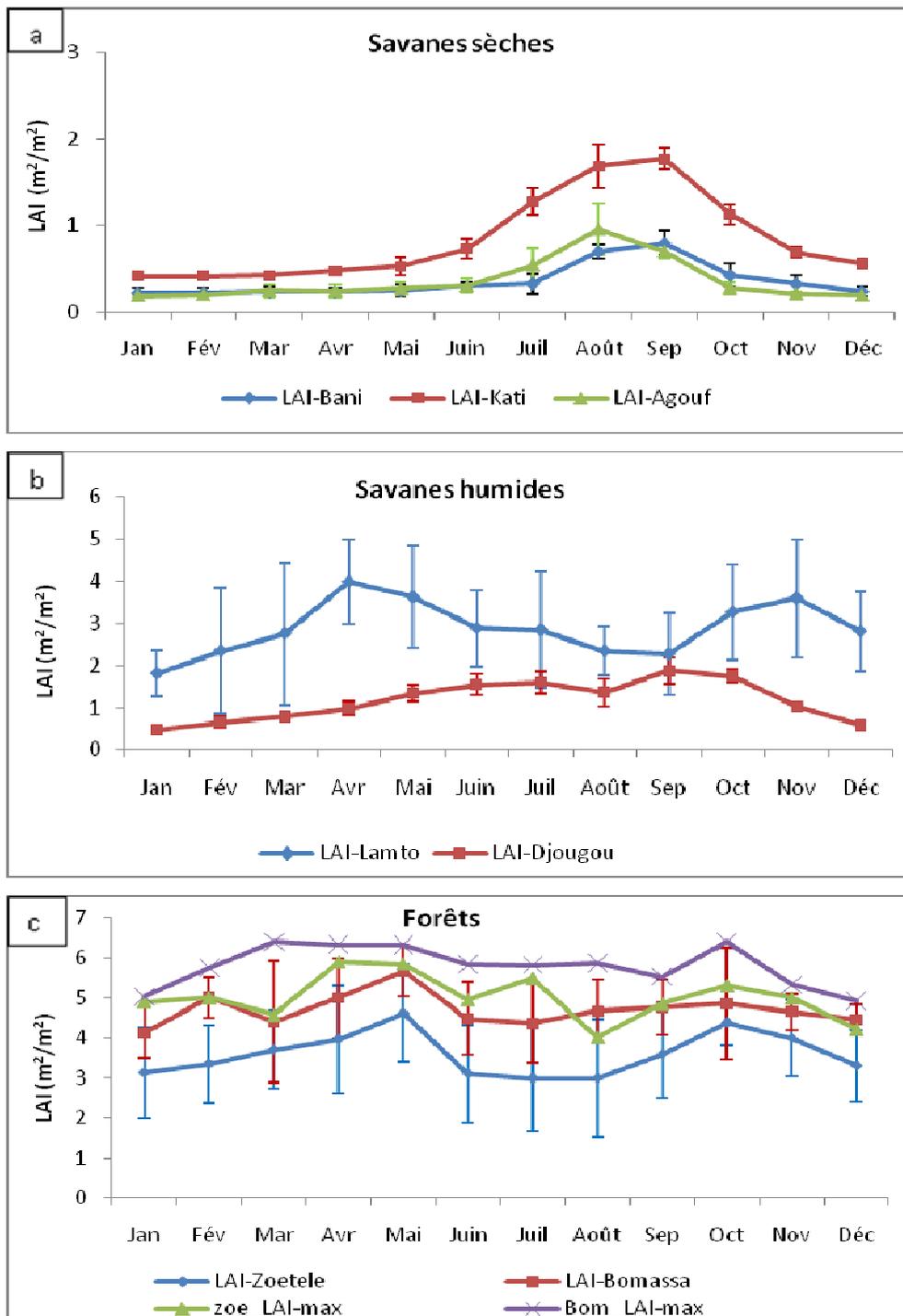


Figure 4.1 : Variation mensuelle des LAI MODIS moyennés sur la période 2000-2007 pour les sites IDAF, (a) en savanes sèches, (b) en savanes humides, (c) en forêts. Les barres verticales sont les écart-types par rapport à la moyenne.

- **Les données météorologiques : forçage ALMIP**

Les données météorologiques nécessaires aux simulations sont la vitesse du vent (u), la température de l'air (T_a), la température de surface (T_s), la pression atmosphérique à la surface (P_a), l'humidité relative (RH) (ou humidité spécifique (q_s)), le rayonnement solaire global incident (SR), le taux de précipitation, la fraction nuageuse.

A l'exception de la fraction nuageuse, les données météorologiques tri-horaires sont fournies par le forçage, dérivé des données satellites, et développé dans ALMIP (AMMA Land surface Model Intercomparison Project). Ce forçage a été obtenu à partir des variables d'état atmosphériques issues d'ECMWF (European Centre of Medium Range Weather Forecast), des données de précipitation tri-horaires issues de TRMM-3B42, et des données de flux incidents longues ondes et flux radiatifs courtes ondes issues de LAND-SAF (Geiger et al., 2008; Huffman et al., 2007). Une description plus complète du forçage ALMIP peut être obtenue dans Boone et al. (2009). La résolution de ce forçage est de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$.

Pour les simulations des vitesses de dépôt sec, nous avons utilisé une base de données météorologique de six ans (2002-2007). Le forçage ALMIP étant valable à 10 m pour la vitesse du vent, la température de l'air et l'humidité relative, nous avons dans un premier temps simulé les vitesses de dépôt sec (V_d) des gaz à 10 m pour l'année 2006 (pour faire des différents tests de sensibilité). Ensuite, nous avons fait des approximations pour simuler les V_d aux hauteurs de mesure des concentrations des gaz sur la période 2002-2007 (voir section 4.1.2).

- **Les données physiologiques : choix des paramètres**

Les données physiologiques des plantes pour le modèle de Zhang03 sont les paramètres d'entrée nécessaires pour le calcul de la résistance stomatique (r_{stmin} , b_{rs} , T_{min} , T_{max} , T_{opt} , b_{vpd} , w_{c1} , w_{c2}), des valeurs de référence des résistances cuticulaire (R_{cutd0} , R_{cutw0}) et aérodynamique dans la canopée (R_{ac0}), des valeurs de la résistance du sol en condition sèche pour SO_2 (R_{gd} (SO_2)) et de la longueur de rugosité (z_0). Ces paramètres ont été présentés dans la paramétrisation de la résistance de surface (R_c) de Zhang et al. (2003b), décrite au chapitre 2.

De façon générale, les paramètres des modèles inférentiels ont été dérivés largement des études européennes et nord américaines et ne sont pas nécessairement adaptés aux végétations et aux sols du continent africain. Des évaluations numériques devraient être effectuées (Fowler et al., 2009), notamment des mesures directes des flux par eddy corrélation (ou

corrélation turbulente). Toutefois, dans cette étude, nous avons essayé d'adapter ces paramètres à nos sites d'étude. L'occupation des sols, déjà mentionnée sous l'acronyme LUC (« Land Use Cover »), décrit les types de terrain sur un domaine considéré, souvent avec une résolution de l'ordre du kilomètre carré. Dans la suite de notre étude, nous désignerons l'occupation des sols ou LUC par biome pour se référer au type de couvert. Zhang et al. (2003b) ont défini 26 biomes dans leur modèle, mais dans cette étude, nous ne présentons que les paramètres liés aux biomes correspondant aux types de forêt et de savane (tropicales) représentatifs de nos sites d'étude. Trois biomes du modèle SiB (Simple Biosphere Model) ont été ajoutés (Brook et al., 1999a) car ils s'avèrent utiles dans le choix de certains paramètres pour les différents types de savanes. Le SiB est une composante terrestre de modèles climatiques qui simulent l'échange d'énergie, d'eau, et la dynamique entre la végétation, le sol et l'atmosphère. Le tableau (4.1a) énumère 7 des biomes décrits dans Zhang et al. (2003b) plus 3 des biomes décrits dans Brook et al. (1999a). Le tableau (4.1b) donne la plupart des paramètres physiologiques, ainsi que les valeurs de référence des résistances.

Pour l'adaptation des paramètres physiologiques décrits dans Zhang et al. (2003b) aux végétations africaines, nous nous sommes basés sur les biomes décrits, par ordre de priorité, dans Zhang et al. (2003b) ; Brook et al. (1999a) ; SiB, Dorman and Sellers (1989) ; SiB2, Sellers et al., 1996. De plus, nous nous sommes référés aux LAI (MODIS) et aux longueurs de rugosité z_0 des sites IDAF et aux classifications des végétations africaines selon GLC 2000 (Africa) (Tableau 4.2).

La longueur de rugosité z_0 est nécessaire dans le calcul de la vitesse de friction (u_*) qui, subséquemment, affecte les résistances aérodynamiques, quasi laminaire et non-stomatiques. Dans notre étude, z_0 a été estimée ou simulée par le modèle ISBA pour chaque site (tableau 4.2). Le modèle ISBA (Interaction Sol-Biosphère-Atmosphère) a été développé pour simuler les échanges d'énergie et d'eau entre la surface et la basse atmosphère. Dans la version utilisée ici, l'évapotranspiration de la végétation est contrôlée par une résistance de type Jarvis (1976).

Pour certaines surfaces, une valeur constante z_0 est suggérée tandis que pour les autres, une gamme de valeurs de z_0 est donnée. Pour ces surfaces qui ont des valeurs z_0 variables, une formule est utilisée pour obtenir z_0 pour n'importe quelle période en se basant sur les valeurs de LAI (Zhang et al., 2003b) :

$$z_0(t) = z_0(\text{min}) + \frac{LAI(t) - LAI(\text{min})}{LAI(\text{max}) - LAI(\text{min})} + [z_0(\text{max}) - z_0(\text{min})] \quad (4.1)$$

Tableau 4.1a : Définition des types de biomes

Biomes	Définition
1	Arbres à feuilles larges persistantes (evergreen broadleaf trees)
2	Arbres tropicaux à feuilles larges (tropical broadleaf trees)
3	Arbres décidus à feuilles larges ou arbres feuillus (deciduous broadleaf trees)
4	Arbustes à feuilles larges persistantes (evergreen broadleaf shrubs)
5	Arbustes décidus ou arbustes à feuilles caduques (deciduous shrubs)
6	herbes longues (long grass)
7	Herbes courtes et plantes herbacées (short grass and forbs)
8*	Arbres à feuilles larges avec plantes pérennes (Broadleaf trees with ground cover) (savane)
9*	Arbustes à feuilles larges avec plantes pérennes (Broadleaf shrubs with perennial ground cover)
10*	Plantes pérennes uniquement (Ground cover only (perennial))

*: Les biomes à deux couches (supérieure : arbre ou arbuste ; inférieure : herbes pérennes ou graminées) du modèle SiB utilisés dans Brook et al., (1999a) .

Tableau 4.1b : Biomes (occupation du sol) et tous les paramètres liés

	1	2	3	4	5	6	7	8*	9*	10*
R_{ac0}	250	300	100-250	60	20-60	10_40	20			
$R_{cutd0} (O_3)$	6000	6000	6000	6000	5000	4000	4000			
$R_{cutw0} (O_3)$	400	400	400	400	300	200	200			
$R_{cutd0}(SO_2)$	2500	2500	2500	2000	2000	1000	1000			
$R_{gd}(SO_2)$	100	100	200	200	200	200	200			
$r_{stmin} (sm^{-1})$	150	150	150	150	150	100	150	160	150	50
$b_{rs} (Wm^{-2})$	40	40	43	40	44	20	50	32	45	20
$T_{min} (°C)$	0	0	0	0	-5	5	5	0	10	10
$T_{max} (°C)$	45	45	45	45	40	45	40	50	52,5	55
$T_{opt} (°C)$	30	30	27	30	15	25	30	31,5	41	40
$b_{vpd} (kPa^{-1})$	0,27	0,27	0,36	0,27	0,27	0	0	0,3	0,26	0,24
$w_{c1}(Mpa)$	-1	-1	-1,9	-2	-2	-1,5	-1,5	-1,6	-1,6	-1,2
$w_{c2} (Mpa)$	-5	-5	-2,5	-4	-4	-2,5	-2,5	-2,4	-3,4	-2,3
$z_o (m)$	2	2,5	0,4-1,0	0,2	0,05-0,2	0,02-0,1	0,04	0,9-1	0,05-0,1	0,05
LAI*	6	6	0,1-5	3	0,5-3	0,5-2	1	0,7-4,5	0,1-2,5	0,3-3

* : Nous avons ajouté le paramètre biophysique LAI dans le tableau pour donner la gamme des LAI utilisés dans Zhang et al.(2003b) ou Brook et al. (1999a)

Tableau 4.2 : Caractéristiques écologiques générales et climatiques des sites IDAF, longueurs de rugosité simulées par le modèle ISBA et gamme des LAI MODIS.

Sites IDAF	LAI (MODIS)	Z ₀ (ISBA)(m)	Zone régionale selon GLC 2000 Afrique	climat
Agoufou	0,2 - 1	0,02	Savane herbeuse ouverte à faible strate arbustive	sahélien
Banizoumbou	0,2 - 1	0,06	Savane herbeuse ouverte à faible strate arbustive	sahélien
Katibougou	0,5 - 2	0,13 – 0,16	Savane arborée à arbustive décidue	Sahélo-soudanien
Djougou	0,5 - 2	0,13 – 0,16	Savane boisée décidue	Soudano-guinéen
Lamto	2 - 4	0,14 – 0,2	Mosaïque forêt/savane	Guinéen
Zoétéélé	5	2,5*	Forêt dense humide	Equatorial
Bomassa	5	2,5*	Forêt dense humide	Equatorial

* Pour les sites forestiers, nous avons utilisé la longueur de rugosité ($z_0=2,5$) du biome 2, c'est-à-dire de la forêt tropicale.

Nous remarquons dans le tableau (4.1a) que les types de biomes adoptés dans Zhang et al. (2003b) ont une seule couche de végétation alors que les savanes (arbustives, arborées ou boisées) en possèdent deux dont la couche supérieure est composée d'arbres ou d'arbustes épars et la couche inférieure de plantes pérennes (ou graminées) généralement continues. Toutefois, en se basant sur la description spécifique et régionale des sites IDAF (chapitre 1), nous pouvons assimiler :

- les biomes des forêts (Zoétéélé et Bomassa) à « arbres tropicaux à feuilles larges » (biome 2),
- les biomes des sites sahéliens (Agoufou et Banizoumbou) à « herbes courtes et herbacées » (biome 7) ;
- Les biomes des sites soudaniens et guinéens (Katibougou et Djougou, et Lamto) à « herbes longues » (biome 6).

Cette première approximation faite pour les écosystèmes des savanes est cohérente avec celle faite dans SiB2 (Sellers et al., 1996). En effet, les propriétés des types de végétations 8*, 9*, 10* (tableau 4.1a) et « sol-nu » dans SiB (savane, arbustes avec graminées, graminées pérennes, et sol nu-désert, respectivement) ont été assignées dans SiB2 à un type de végétation unique, graminées C4, qui est supposé être le type de végétation dominante dans ces domaines. Cependant, cette simplification réduit le réalisme du modèle SiB2 dans les zones naturelles qui ont deux strates de couverture végétales, telles que les savanes où les arbres de type C3 surplombent les herbes ou les graminées C4 (Sellers et al., 1996). Par conséquent, d'autres approximations s'avèrent nécessaire pour les savanes arbustives, arborées ou boisées.

L'analyse des LAI et des longueurs de rugosité, montre que les biomes « arbustes décidus » (biome 5) et « herbes longues » (biome 6) peuvent être tous deux représentatifs des sites de Katibougou, Djougou et Lamto. La 1^{ère} approximation consiste donc à faire une simulation avec les données du biome 6 et la 2^{ème} approximation avec celles du biome 5 pour les 3 sites. Les simulations des vitesses de dépôt sec pour O₃ et SO₂, avec les données météorologiques de l'année 2006, sont présentées sur la figure (4.2) pour ces 2 approximations.

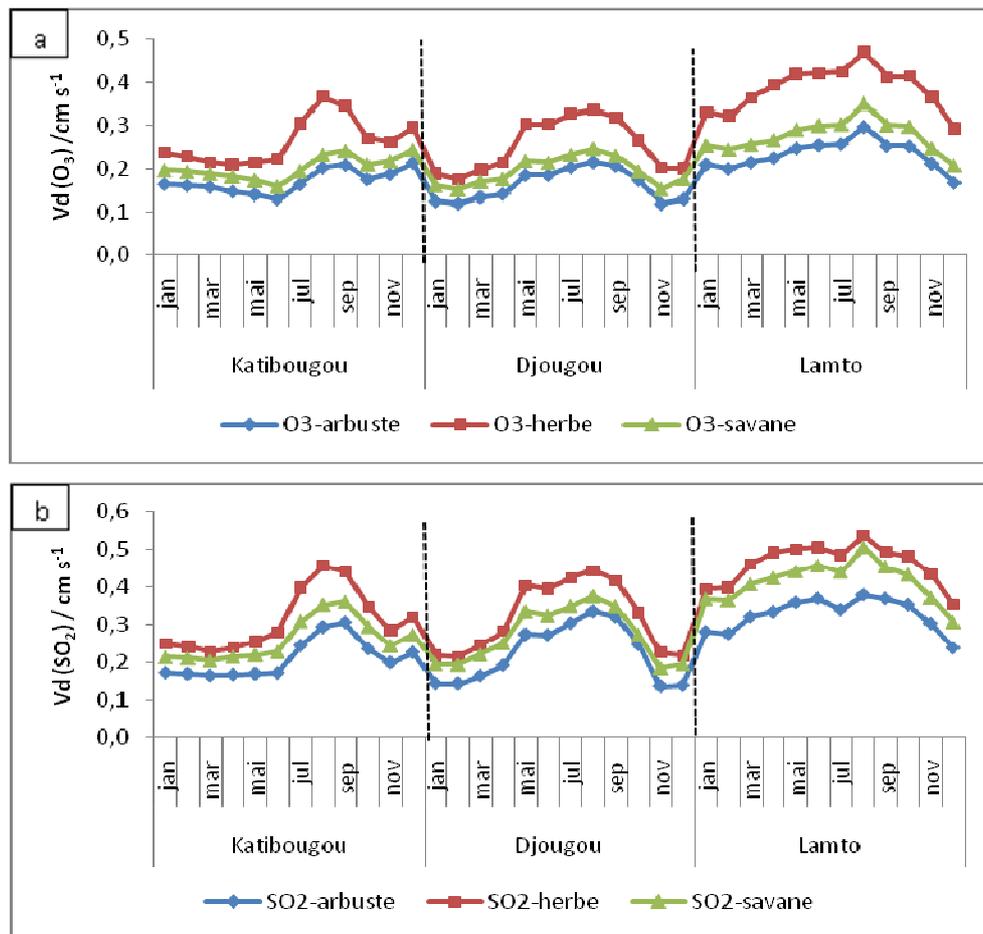


Figure 4.2 : évolution mensuelle des vitesses de dépôt sec d'O₃ (a) et SO₂ (b) obtenues avec les 3 approximations (1^{ère} : herbe ; 2^{ème} : arbuste ; 3^{ème} : savane).

La figure (4.2) montre que l'écart entre les deux approximations (« arbuste » et « herbe ») n'est pas négligeable, cependant la densité du couvert ligneux des savanes varie fortement. Il est donc difficile de réaliser une combinaison des deux strates, ajoutant des incertitudes supplémentaires.

Différents tests de sensibilité (non présentés) nous ont permis de faire une troisième approximation (savane) afin de tenir compte des biomes du modèle SiB utilisés dans Brook et al.(1999a), correspondant aux types de savanes. Ainsi pour le calcul de la résistance stomatique R_{st} , nous avons utilisé les paramètres du biome 8* pour Djougou et Lamto, 9* pour Katibougou, et pour le calcul des autres résistances ceux du biome 6 pour les domaines soudanien et guinéen. Les simulations de V_d avec cette 3^{ème} approximation sont présentées sur la figure 4.2 (courbe : savane).

Les différents tests de sensibilité sur les paramètres pour le calcul de R_{st} , ont indiqué que la vitesse de dépôt est plus sensible à la valeur de r_{stmin} (équations 2.19 et 2.20) surtout pour O_3 dont l'absorption est contrôlée par l'ouverture stomatique. La résistance stomatique minimale (r_{stmin}) traduit la capacité de la feuille « non-stressée » à fermer ses stomates. Plus elle est importante et plus le dépôt est faible. Elle est de l'ordre de 150 s m^{-1} pour la 3^{ème} approximation et 100 s m^{-1} pour la 1^{ère} ; ceci explique en partie l'écart considérable entre les deux approximations pour O_3 (figure 4.2).

En résumé, nous utilisons les paramètres du biome 2 pour les sites de forêts (Zoétélé et Bomassa), du biome 7 pour les sites de Banizoumbou et Agoufou, et du biome 6 et pour le calcul de R_{st} , du biome 8* pour Djougou et Lamto et du biome 9* pour Katibougou pour le calcul respectif des V_d sur chacun des sites IDAF. La résistance stomatique minimale est prise égale à 150 s m^{-1} . Les longueurs de rugosité sont simulées par le modèle ISBA et les LAI MODIS sont calculés pour chaque site. Le forçage météorologique développé dans le cadre du programme ALMIP est utilisé.

4.1.2. Sensibilité du modèle à certains paramètres d'entrées

- **A l'apparition de rosée**

La formule de Janssen and Romer (1991) utilisée dans le modèle de Zhang03 pour prédire l'apparition de la rosée nécessite la fraction nuageuse comme donnée météorologique (équation 2.17 du chapitre 2). Pour estimer les vitesses de dépôt sec de SO_2 en condition humide de rosée (en forêt tropicale de Taiwan), Tsai et al., (2010) ont adopté les travaux de Sentelhas et al. (2008) qui avaient souligné que la méthode du seuil de la constante de l'humidité relative (RH) pourrait être un outil pratique et utile pour estimer la condensation de la rosée. Tsai et al. (2010) et Sentelhas et al. (2008) ont pris un seuil d'humidité relative 90%. Différents seuils de RH ont été utilisés comme indicateurs pour déterminer l'humidité du

couvert. Van Jaarsveld (2004) a déterminé un point commutateur sec/humide de 87% à partir des observations d'humidité de surface sur des forêts mixtes, tandis que pour les prairies Wichink Kruit et al. (2008, 2010) ont suggéré un seuil de 71%. Flechard et al. (2011), dans leur étude de comparaison des différents modèles inférentiels, ont choisi l'humidité du couvert sur la base d'un seuil sec/humide de 81% (RH), ce qui correspond au point de déliquescence du sulfate d'ammonium (Flechard et al., 1999).

Dans le cadre de notre étude, ne disposant pas de données de fraction nuageuse, nous avons réalisé des tests de sensibilité à la présence de rosée en supposant, un seuil d'humidité relative de 90% en forêt équatoriale (Tsai et al., 2010), de 81% en savane humide et de 71% en savane sèche. Les tests de sensibilité sur les vitesses de dépôt sont présentés dans le tableau 4.3 pour le SO₂, l'un des gaz les plus sensibles à l'humidité, pour 3 sites représentant les 3 principaux écosystèmes.

Tableau 4.3 : Tests de sensibilité à la présence de rosée dans l'estimation des V_d (SO₂) mensuelles pour les sites de Banizoumbou (RH=71%), Lamto (RH=81%) et Zoétéle (RH=90%) respectivement sur le transect savane sèche-savane humide-forêt.

V _d (cm/s)	Banizoumbou		Lamto		Zoétéle	
	SO ₂	SO ₂ -rosée* RH≥71%	SO ₂	SO ₂ -rosée* RH≥81	SO ₂	SO ₂ -rosée* RH≥90%
Jan-mars	0,14	0,14	0,36	0,36	0,63	0,65
Avr-juin	0,20	0,20	0,41	0,41	0,64	0,67
Juil-sep	0,28	0,29	0,43	0,43	0,75	0,78
Oct-déc	0,18	0,18	0,34	0,34	0,63	0,65
annuel	0,20	0,20	0,38	0,38	0,66	0,69
RMSE**	0,01		0,004		0,03	
RMSE%	2		1		4	

*V_d (SO₂-rosée) est la vitesse de dépôt simulée lorsqu'on suppose qu'il y a apparition de rosée si l'humidité relative (RH) est supérieure ou égale à 90% ou 81% ou 71% selon les sites. Dans l'autre cas (SO₂), cette hypothèse n'a pas été prise en compte.

**RMSE (Root Mean Squared Error) : erreur quadratique moyenne ou écart relatif moyen quadratique.

Le tableau (4.3) montre que la variation de la vitesse de dépôt sec mensuelle est négligeable lorsqu'on suppose qu'il y a apparition de rosée à RH=90% à Zoétéle, RH= 81% à Lamto et RH=71% à Banizoumbou. Pour l'O₃ et le NO₂, les écarts relatifs moyens quadratiques entre

les V_d simulées, en présence de rosée ou non, sont nuls pour tous les sites (résultats non présentés). Pour NH_3 et HNO_3 , l'erreur-type RMSE est aussi négligeable. Dans notre étude, nous ne prenons donc pas en compte l'hypothèse d'apparition de rosée. De plus, les vitesses de dépôt sec simulées sous des conditions sèches et de rosée dans Zhang et al. (2003b) ont montré que les valeurs de V_d ne varient pas significativement.

- **Aux indices foliaires (LAI)**

Dans la paramétrisation révisée de Zhang et al. (2003b), à l'exception de la résistance du sol (R_g), les principales résistances du couvert (R_{cut} , R_{st} , R_{ac}) sont paramétrées en fonction du LAI. De fortes valeurs d'écart-types des LAI mensuels entre 2000 et 2007 (de l'ordre de 1 en moyenne) ont été observées sur quelques sites (figures 4.1) et les coefficients de variation moyens mensuels sont de l'ordre de 40%, 30% et 20% respectivement à Lamto, Zoétéélé et Bomassa. Pour les autres sites, les coefficients de variation sont de l'ordre de 10% pour Djougou et Katibougou, de 20% pour Agoufou et de 30% pour Banizoumbou. Pour ces sites les valeurs des LAI sont faibles par rapport aux 3 premiers sites cités. Des tests de sensibilité aux LAI ont donc été faits pour évaluer l'influence ou l'impact de l'écart des LAI par rapport à la moyenne sur les valeurs calculées de vitesses de dépôt sec.

Pour le gaz O_3 , les résultats de ces différents tests de sensibilité sur trois sites représentatifs des 3 principaux écosystèmes sont présentés dans le tableau 4.4.

Tableau 4.4 : Test de sensibilité aux écarts de LAI à Banizoumbou, Lamto, Zoétéélé pour O_3 .

V_d (O_3) (cm/s)	Banizoumbou		Lamto		Zoétéélé		
	LAI *	LAI +0,5	LAI *	LAI-1	LAI*=5	LAI-1	LAI+1
	0,2<LAI<1	0,7<LAI<1,5	2<LAI<4	1<LAI<3		LAI=4	LAI=6
Jan-mars	0,13	0,13	0,25	0,23	0,34	0,32	0,35
Avr-juin	0,15	0,16	0,29	0,26	0,33	0,31	0,34
Juil-sep	0,19	0,21	0,32	0,29	0,37	0,35	0,39
Oct-déc	0,15	0,16	0,25	0,23	0,32	0,30	0,33
annuel	0,15	0,16	0,28	0,25	0,34	0,32	0,35
**RMSE	0,01		0,02			0,02	0,01
RMSE en %	5,7%		8,6%			5,9%	3,4%

*LAI : les LAI MODIS mensuels (figures 4.1) utilisés pour simuler les vitesses de dépôt des gaz au niveau des sites IDAF.

**RMSE: erreur quadratique moyenne ou écart relatif moyen quadratique (par rapport aux LAI* utilisés pour simuler les V_d).

Nous remarquons dans le tableau (4.4) que les vitesses de dépôt (O_3) mensuelles varient très peu quand le LAI varie. Les écarts relatifs moyens quadratiques entre les vitesses de dépôt mensuelles sont faibles et du même ordre de grandeur pour tous les autres gaz lorsque la valeur du LAI augmente de 1 ou 0,5 selon les sites. Ainsi, les LAI MODIS mensuels moyennés sur la période 2000-2007 et considérés comme représentatifs des sites IDAF, seront utilisés pour simuler les vitesses de dépôt sec des gaz sur la période 2002-2007. Les données météorologiques (forçage ALMIP) disponibles pendant cette période nous permettront d'évaluer la variation des vitesses de dépôt en fonction de l'ensemble de ces données.

- **Approximations liées aux hauteurs de mesure des concentrations de gaz**

Dans le cadre du réseau international de mesure IDAF, les concentrations des gaz sont mesurées à une hauteur d'environ 2 m dans les sites de savanes et 3 m dans les sites de forêts. Certaines données météorologiques du forçage ALMIP notamment la vitesse du vent, la température de l'air et l'humidité relative sont valables à 10 m. Pour simuler les vitesses de dépôt à une hauteur de référence (z) de 2 m, nous avons utilisé la température de l'air et l'humidité relative à 2 m estimées par le modèle ISBA à partir des données ALMIP à 10 m, et calculé la vitesse du vent à 2 m par approximation logarithmique (équation 2.8 du chapitre 2) pour les sites des savanes. Nous notons que Delon et al. (2010) avaient aussi utilisé la loi logarithmique (dépendant de la longueur de rugosité) pour déduire la vitesse du vent à 2 m afin d'estimer les vitesses de dépôt sec à 2 m dans les trois sites IDAF en savanes sèches par le modèle ISBA. La figure (4.3) présente la comparaison des vitesses de dépôt sec estimées à 10 m et à 2 m pour les gaz SO_2 , O_3 et HNO_3 dans les savanes herbacée (Banizoumbou), arbustive (Katibougou) et arborée (Lamto). Nous observons sur la figure (4.3) que l'écart entre les vitesses de dépôt estimées à 2 et 10 m est faible pour SO_2 et HNO_3 et très faible voire négligeable pour O_3 . Les écarts relatifs moyens quadratiques (RMSE) pour l'ensemble des 3 sites sont de l'ordre de 0,04 pour SO_2 , de 0,01 pour O_3 et 0,16 pour HNO_3 . Toutefois, nous remarquons une légère augmentation pour les vitesses de dépôt estimées à 2 m surtout pour HNO_3 et SO_2 . Nous tenons à signaler que, par la loi logarithmique, les vitesses du vent à 10 m ont été réduites de 31%, 38% et 39% respectivement à Banizoumbou, Katibougou et Lamto pour obtenir les vitesses de vent à 2 m ; ce qui donne une valeur moyenne annuelle respectivement de $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $0,8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Pour le site de Lamto, Abbadie et al. (2006) ont rapporté que la vitesse moyenne journalière du vent mesurée par un anémomètre à hélice à 2 m dans une clairière est faible et autour de $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.

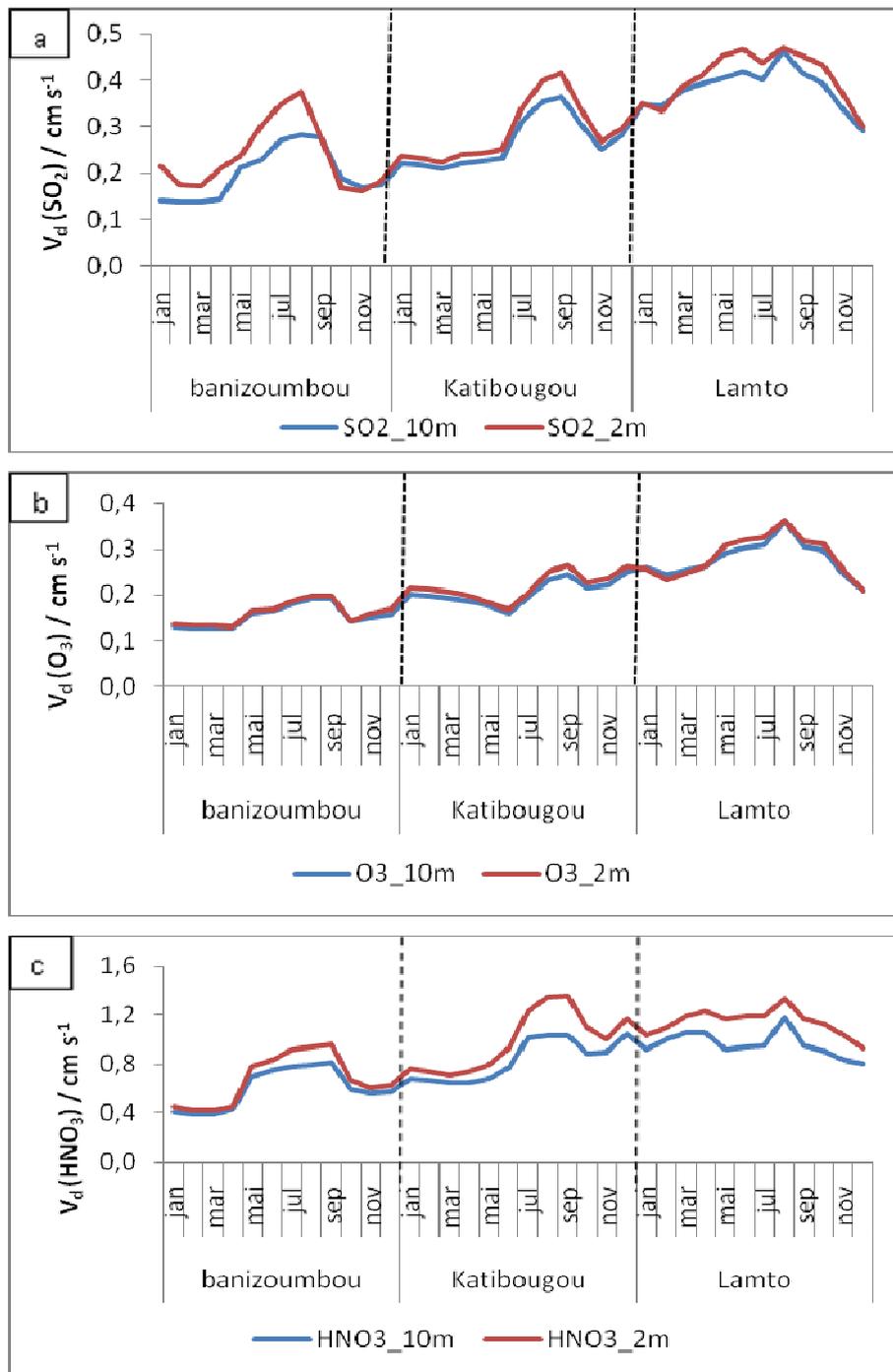


Figure 4.3 (a, b, c) : Comparaison des vitesses dépôt sec de SO_2 (a), O_3 (b) et HNO_3 (c) estimées à 10 m et 2 m à Banizoumbou, Katibougou et Lamto pour l'année 2006.

Considérant que l'écart type est faible entre les V_d simulées à 2 et 10 m nous avons estimé les vitesses de dépôt sec des gaz à 2 m pour les sites des savanes.

L'utilisation de la loi logarithmique pour réduire la vitesse du vent en savanes suppose qu'entre 10 et 2 m le flux est considéré comme constant. Cette approximation n'est pas

valable en forêt. En effet, à l'intérieur d'un couvert végétal, le flux vertical de quantité de mouvement n'est plus constant en fonction de la hauteur (flux non conservatif). Les feuilles, les tiges et les branches agissent sur l'écoulement de l'air comme étant des freins aérodynamiques. A l'intérieur du couvert, la vitesse diminue avec la profondeur, on utilise généralement une loi d'atténuation exponentielle décrite par diverses équations (Guyot, 1999) dont certains facteurs doivent être ajustés expérimentalement. Pour les sites de forêts, tenter de réduire la vitesse de vent ou d'appliquer un facteur correctif aux concentrations mesurées expérimentalement à 3 m (pour les ramener à 10 m) introduirait d'autres incertitudes sur les flux estimés. En effet, il y a peu de publications dans la littérature sur le profil vertical des concentrations des gaz (comme HNO_3 , NH_3) dans le couvert forestier (Flécharde et al., 2011). Ainsi, pour évaluer l'incertitude commise (vitesse de dépôt sec simulée à 10 m et concentration mesurée à 3 ou 2 m) nous avons mis en œuvre une expérience pilote (en septembre 2010) afin de réaliser des mesures de concentrations des gaz simultanément à 10 m et 3 m (ou 2m) pour chaque principal type d'écosystème. Ces mesures ont été faites dans trois sites IDAF (Zoétélé, Lamto, Banizoumbou), représentant chacun un type d'écosystème (respectivement forêt, savane humide, savane sèche). Les tableaux 4.5a et 4.5b présentent les résultats des mesures des concentrations des gaz azotés (a), du dioxyde de soufre et de l'ozone (b) sur la période septembre 2010-février 2011 à Zoétélé, Lamto et Banizoumbou. Cette étude a nécessité la construction de tour (ou de mât) sur chacun des 3 sites. La photo 1 présente la tour construite dans la forêt de Zoétélé au Cameroun.



Photo1 : Mât de mesure des concentrations des gaz à 10 m à Zoétélé (forêt).

Tableau 4.5a : Concentrations mensuelles (en ppb) des gaz azotés (NO₂, NH₃, HNO₃) mesurées simultanément à 2 m (C1) et 10 m (C2) à Zoétélé, Lamto, Banizoumbou sur la période septembre 2010-février 2011.

	Mois	NO ₂			NH ₃			HNO ₃		
		C1=2m	C2=10m	C1/C2	C1=2m	C2=10m	C1/C2	C1=2m	C2=10m	C1/C2
Forêt (Zoétélé)	nov	0,8	0,9	0,9	*	*		0,4	0,4	1,0
	déc	0,5	0,5	1,1	*	*		0,4	<0,1	
	janv	0,6	0,8	0,9	*	*		<0,1	0,5	
Savane humide (Lamto)	sept	0,8	0,7	1,1	5,5	5,4	1,0	0,2	0,5	0,4
	oct	0,7	1,1	0,7	5,2	6,3	0,8	0,1	0,1	1,1
	nov	0,7	1,3	0,5	1,8	1,4	1,3	0,4	0,4	1,0
	déc	0,6	0,7	0,9	5,0	3,8	1,3	1,1	0,5	2,4
	janv	1,5	1,6	0,9	3,4	5,5	0,6	0,7	<0,1	
Savane sèche (Banizoumbou)	sept	3,9	2,4	1,6	14,2	11,5	1,2	0,5	0,7	0,7
	oct	4,4	4,1	1,1	13,3	11,1	1,2	0,3	0,5	0,7
	janv	0,7	<0,2		1,2	<0,7		<0,1	<0,1	
	fév	1,7	1,1	1,6	2,5	1,7	1,5	0,1	0,1	0,7

* Concentrations de NH₃ anormalement très élevées en forêt qui seraient dues certainement à une contamination de l'échantillon

< Valeur inférieure à la limite de détection (voir chapitre 2, section 2.2.2).

Tableau 4.5b : Concentrations mensuelles (en ppb) des gaz (SO₂, O₃) mesurées simultanément à 2 m (C1) et 10 m (C2) à Zoétélé, Lamto, Banizoumbou sur la période septembre 2010-février 2011.

	Mois	SO ₂			O ₃		
		C1=2m	C2=10m	C1/C2	C1=2m	C2=10m	C1/C2
Forêt (Zoétélé)	nov	0,9	0,8	1,1	6,6	4,0	1,7
	déc	0,7	1,6	0,5	4,3	4,4	1,0
	janv	1,3	<0,1		4,0	5,9	0,7
Savane humide (Lamto)	sept	2,1	<0,1		5,8	10,2	0,6
	oct	2,1	3,6	0,6	5,9	9,3	0,6
	nov	1,8	1,4	1,4	7,0	12,0	0,6
	déc	1,7	2,4	0,7	11,2	16,3	0,7
	janv	1,2	2,7	0,4	8,6	15,0	0,6
Savane sèche (Banizoumbou)	sept	4,3	3,3	1,3	14,3	15,1	0,9
	oct	4,0	4,1	1,0	15,5	17,1	0,9
	janv	0,2	0,2	1,1	2,1	2,8	0,8
	fév	0,5	0,4	1,1	2,9	2,8	1,0

< Valeur inférieure à la limite de détection (voir chapitre 2, section 2.2.2).

Les tableaux 4.5a et 4.5b montrent que, d'une façon générale, les concentrations mensuelles des gaz mesurées simultanées à 2 m et à 10 m ne présentent pas de tendance significative et sont de même ordre de grandeur puisque le rapport C1/C2 est proche de 1 à l'exception de quelques valeurs. Nous notons qu'à Lamto (savane humide), toutes les concentrations d'O₃ mesurées aux environs de 2 m sont nettement inférieures à celles mesurées à 10 m. Nous

remarquons aussi qu'à Banizoumbou (savane sèche), pour les gaz de sources primaires (NO_2 , NH_3 et SO_2) le rapport des concentrations est supérieur ou égal à 1, ce qui signifie que près des sources les concentrations sont légèrement plus élevées. Pour Zoétéélé, site forestier, aucune tendance particulière n'est observée. Les mesures des gaz simultanément à 2 ou 3 m et 10 m, débutées en septembre 2010, se poursuivent dans les trois sites IDAF afin d'obtenir une base de données d'une année de mesure complète. La covariance moyenne des capteurs exposés simultanément à 2 m (ou 3m) et 10 m a été estimée à 16%, 18%, 24%, 25% et 21% respectivement pour NO_2 , NH_3 , HNO_3 , SO_2 et O_3 . Cette covariance est comparable à la reproductibilité moyenne des capteurs IDAF qui est de 9,8%, 14,3%, 20%, 16,6% et 10% respectivement pour NO_2 , NH_3 , HNO_3 , SO_2 et O_3 (voir paragraphe 2.2.2. du chapitre 2). En se basant sur les mesures faites en saison sèche (avec un ou deux mois de la saison humide selon les sites), nous pouvons conclure que les concentrations mensuelles mesurées à ces deux hauteurs sont de même ordre de grandeur et que les différences entre les 2 mesures sont incluses dans l'incertitude calculée pour la méthode des capteurs passifs. Par conséquent, nous supposons que l'erreur commise en utilisant les vitesses simulées à 10 m et les concentrations mesurées à 3 m pour estimer les flux de dépôt sec en forêt est négligeable et nous utiliserons les données météorologiques ALMIP à 10 m.

- **Test de sensibilité sur la vitesse du vent**

La vitesse du vent est également un paramètre d'une grande importance dans le processus de dépôt. Les valeurs mensuelles de la vitesse du vent à 10 m, au cours de l'année 2006, sont comprises entre 0,7 et 1,5 m.s^{-1} en forêt, entre 1 et 2 m.s^{-1} en savane humide et entre 2 et 4 m.s^{-1} en savane sèche. Ces différences sont liées à la densité de la végétation au niveau de chaque écosystème. Les conditions de la circulation générale en Afrique font qu'en dehors des brises de mer, dans la zone intertropicale, le vent horizontal moyen est généralement faible et souvent inférieur à 1-2 m.s^{-1} , créant ainsi des incertitudes dans le calcul de la résistance aérodynamique (R_a).

Nous signalons que dans notre étude, pour le calcul de R_a , nous avons imposé des valeurs limites minimales à la vitesse de friction (u_*) comme l'a suggéré Padro et al. (1991) dans le cas de vent faible pour les conditions atmosphériques stables : $u_*=0,15 \text{ m s}^{-1}$ pour les sites de savanes et $u_*=0,25 \text{ m s}^{-1}$ pour les sites forestiers (voir paragraphe 2.3.3 du chapitre 2).

La différence entre la vitesse du vent issue du forçage (réduit par la loi logarithmique) et la vitesse du vent mesurée « in situ » (autour de 2 m) se situe entre 5 et 35% selon les sites

(Delon et al., 2010). Nous signalons que les mesures du vent « in situ » sont des données journalières alors que le forçage fournit des données tri-horaires. Nous avons donc fait des tests de sensibilité à la vitesse du vent en réduisant les valeurs tri-horaires de 20% (taux moyen) pour quelques sites de savanes et en gardant 2 m comme hauteur de référence (z). Le tableau (4.6) illustre les résultats du test sur la vitesse du vent pour SO₂ et HNO₃ au niveau du site de Banizoumbou.

Tableau 4.6 : Test de sensibilité sur la vitesse du vent (u) à Banizoumbou.

Vd (cm/s)	SO ₂		HNO ₃	
Vitesse du vent	u	u**	u	u**
Jan-mars	0,14	0,13	0,39	0,34
Avr-juin	0,20	0,17	0,62	0,55
Juil-sep	0,28	0,25	0,79	0,77
Oct-déc	0,18	0,16	0,58	0,50
annuel	0,20	0,18	0,60	0,54
RMSE	0,03		0,16	
RMSE (%)	14,5		19,6	

u est le vent tri-horaire à 2 m du forçage ALMIP réduit de 20%**

Nous remarquons que si la vitesse du vent est réduite de 20%, la vitesse de dépôt sec est aussi réduite, soit de 19.6% pour HNO₃ et 14.5% pour SO₂. L'écart relatif moyen quadratique (RMSE) est plus important pour HNO₃ (19.6%) car sa vitesse de dépôt dépend plus de la résistance aérodynamique (R_a), la résistance du couvert (R_c) étant négligeable pour cette espèce. Une faible vitesse de vent implique une résistance aérodynamique élevée donc une vitesse de dépôt faible. L'écart relatif moyen quadratique est 13% pour O₃ et 12% pour NO₂ et 14% pour NH₃. Une réduction de la vitesse du vent de 20% à Agoufou donne les mêmes ordres de grandeur des écarts relatifs moyens de V_d que ceux estimés à Banizoumbou.

En savane humide, où la végétation est plus dense et la vitesse du vent plus faible, nous avons supposé un taux moyen d'incertitude de 30% sur la vitesse du vent. Une réduction de 30% des valeurs tri-horaires de la vitesse de vent à Lamto conduit à une réduction de la vitesse de dépôt sec de 9% pour SO₂, 8% pour NH₃, 7% pour O₃ et NO₂, et 11% pour HNO₃. Cette faible variation de la vitesse de dépôt due à la réduction de la vitesse du vent est la conséquence de la valeur u* limite inférieure imposée à la vitesse de friction, donc indirectement à la vitesse du vent. Toutefois, nous remarquons que la réduction de la vitesse

du vent a moins d'influence sur les V_d de SO_2 et O_3 , et donc sur celles de NH_3 et NO_2 par rapport à HNO_3 car leur dépôt sec dépend plus de la résistance du couvert (R_c).

D'une façon générale, l'erreur quadratique moyenne des vitesses de dépôt sec (V_d) des gaz due à la vitesse du vent est comprise entre 10 et 20% pour les sites des savanes. Nous supposons donc que l'incertitude (sur le calcul des V_d) liée à la vitesse du vent est de l'ordre de 10-20%.

A travers la présentation du modèle de Zhang03, de la qualité des données météorologiques et biophysiques utilisées pour les sites IDAF, des différents tests de sensibilité et des différentes approximations utiles, nous avons montré la validité de la méthode d'estimation des vitesses de dépôt sec. Les résultats des calculs de vitesses de dépôt sec, utilisant cette méthode, sont présentés dans la section suivante pour les différents types d'écosystèmes africains.

4.1.3. Résultats des simulations des vitesses de dépôt sec des gaz

Les vitesses de dépôt sec (V_d) des gaz O_3 , SO_2 , NO_2 , NH_3 et HNO_3 des sites IDAF ont été estimées sur des bases tri-horaires et mensuelles par l'utilisation du modèle « big-leaf » de Zhang03. Les vitesses de dépôt mensuelles ont été simulées à 2 m pour les sites des savanes et à 10 m pour les sites des forêts sur la période 2002-2007. Pour contraindre le modèle de dépôt, les données météorologiques tri-horaires du programme ALMIP ont été utilisées sur la période 2002-2007. Pour les conditions de surfaces spécifiques aux sites IDAF, les données LAI MODIS (moyennées sur la période 2000-2007), les longueurs de rugosité (z_0) simulées par le modèle ISBA et les paramètres physiologiques adaptés aux types de végétations IDAF ont été utilisés.

Toutes ces données assimilées m'ont permis d'estimer des V_d représentatives des sites IDAF, et donc de calculer des flux de dépôt sec gazeux. Les variabilités mensuelle, saisonnière et interannuelle des vitesses de dépôt sec des gaz seront présentées comme ce fut le cas des concentrations gazeuses (chapitre 3) afin de mieux appréhender par la suite les variations des flux de dépôt sec.

L'analyse des variations intra-annuelles des vitesses de dépôt sec (V_d) des gaz SO_2 , O_3 et HNO_3 présentées à l'annexe III montre que l'évolution mensuelle des V_d d'un gaz est similaire d'une année à une autre, sur la période 2002-2007, pour tous les sites. Ainsi, les V_d

mensuelles des gaz ont été moyennées sur la période 2002-2007 pour tous les sites. Les variations de V_d sont respectivement présentées sur les figures 4.4 et 4.5 pour SO_2 et O_3 et pour NH_3 , NO_2 et HNO_3 . Les coefficients de variations mensuelles sont compris entre 4 et 12% pour O_3 et NO_2 , entre 7 et 14% pour SO_2 et NH_3 et entre 6 et 20% pour HNO_3 . Ces variations observées pourraient être attribuées en général aux variations des données météorologiques d'une année sur l'autre. Les plus forts coefficients de variation sont observés en savane sèche avec un maximum pour HNO_3 (20%) en lien à une résistance du couvert négligeable et aux variations de la vitesse du vent. Nous observons sur les figures (4.4) et (4.5) une distinction assez nette des valeurs de vitesses de dépôt sec entre les différents domaines climatiques. Les valeurs mensuelles des V_d augmentent du domaine sahélien (Agoufou) vers le domaine climatique équatorial (Zoétélé). Sur le transect, la vitesse de dépôt sec augmente donc avec la densité de la végétation. Les plus faibles valeurs de V_d , pour tous les gaz, ont été obtenues en savanes sèches et les plus élevées en forêts. Le gradient des vitesses de dépôt sec sur le transect suit donc en première approximation le gradient climatique, la distribution spatiale de la végétation en Afrique de l'Ouest et Centrale correspondant étroitement aux zones climatiques. Il existe en effet un gradient latitudinal prononcé sur la zone d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Les zones qui reçoivent un cumul important de précipitations possèdent un volume important de biomasse, par conséquent le dépôt surfacique (ou cuticulaire) et l'absorption stomatique deviennent importants, la résistance du couvert (R_c) étant le facteur principal déterminant la vitesse de dépôt dans les zones végétatives. Les résultats obtenus montrent que les vitesses de dépôts sec simulées par le modèle de Zhang03 sont donc représentatives des sites spécifiques IDAF en terme de climat et de végétation.

Nous observons aussi que les évolutions mensuelles des gaz SO_2 et NH_3 sont semblables car ils possèdent des caractéristiques de dépôt similaires bien qu'ils aient des propriétés chimiques différentes (Zhang et al., 2002a). De même, l'évolution mensuelle d' O_3 est similaire à celle de NO_2 , leur dépôt sec restant contrôlé par l'absorption stomatique.

Sur le transect savane sèche-savane humide-forêt, les valeurs mensuelles moyennes de V_d , varient de 0,16 à 0,84 cm.s^{-1} pour SO_2 , de 0,16 à 0,99 cm.s^{-1} pour NH_3 , de 0,14 à 0,40 cm.s^{-1} pour O_3 , de 0,13 à 0,37 cm.s^{-1} pour NO_2 et de 0,48 à 2,56 cm.s^{-1} pour HNO_3 . Pour un site donné, nous remarquons que les valeurs de V_d sont plus élevées en saison humide pour tous les gaz, surtout pour les sites de savanes et particulièrement pour les sites des savanes sèches où la saison sèche est bien marquée.

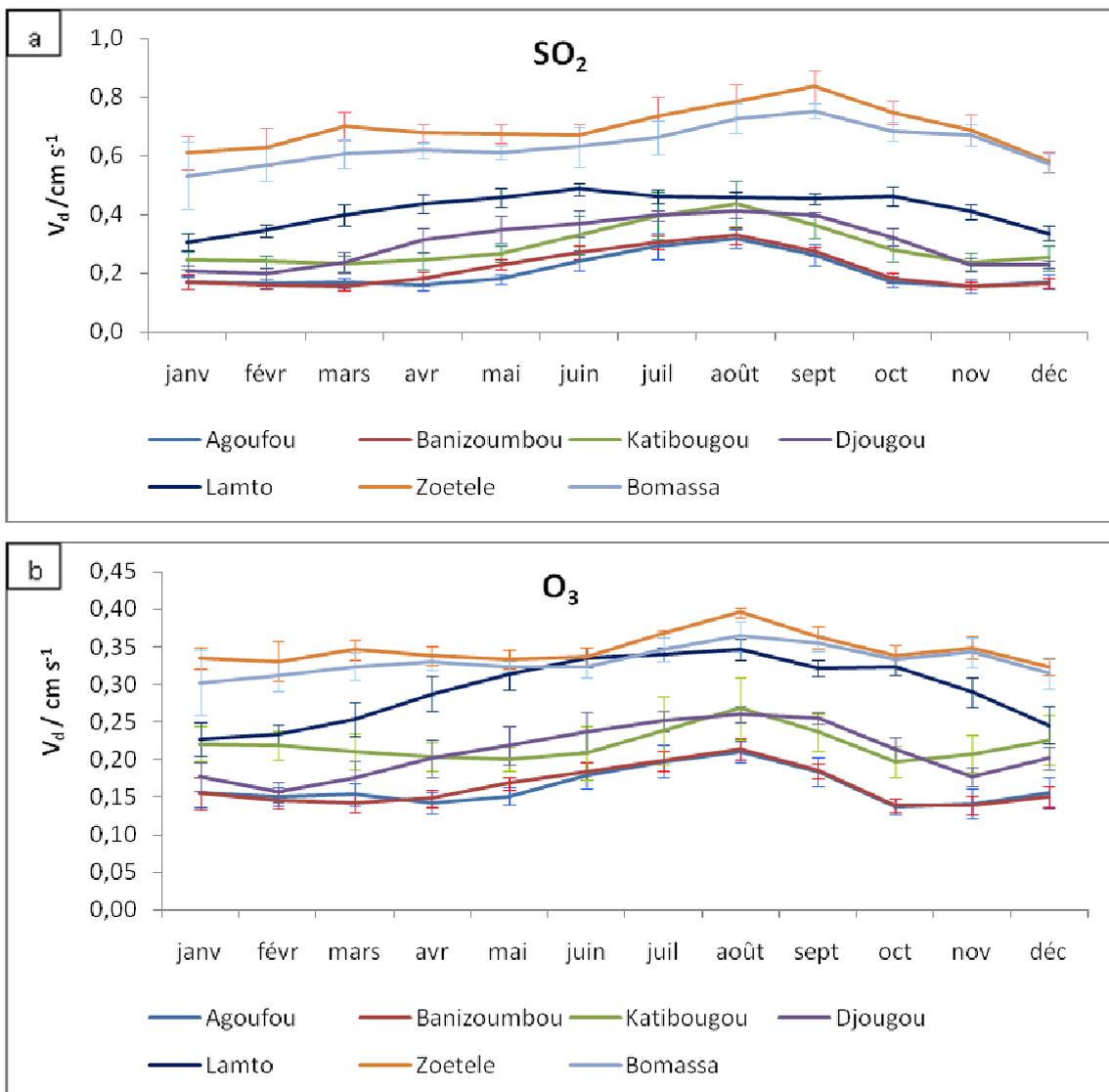


Figure 4.4(a, b) : Variations mensuelles des vitesses de dépôt sec de SO₂ (a) et O₃ (b) moyennées sur la période 2002-2007 pour les sites IDAF.

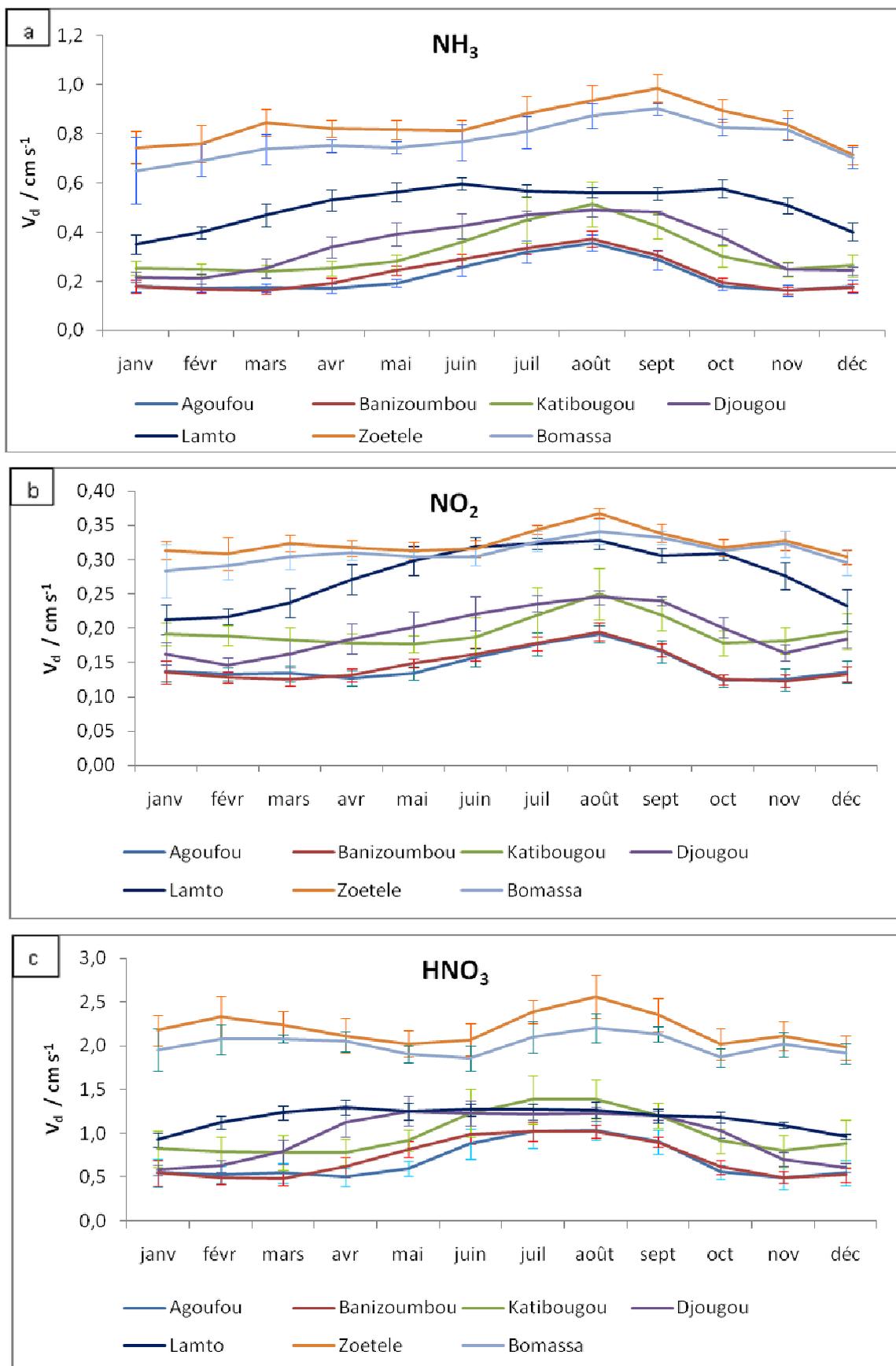


Figure 4.5(a, b, c) : Variations mensuelles des vitesses de dépôt sec de NH₃ (a), NO₂ (b) et HNO₃ (c) moyennées sur la période 2002-2007 pour les sites IDAF.

Les valeurs des vitesses de dépôt saisonnières des gaz sont présentées dans le tableau 4.7. A l'exception de Lamto, les V_d de SO_2 , NH_3 et HNO_3 sont environ 1,5 fois plus élevées en saison humide qu'en saison sèche pour les sites de savanes. Pour les autres sites, l'écart est plus faible entre les deux saisons, surtout pour les sites de forêts ; ceci pourrait s'expliquer par le climat plus humide de ces sites dans les deux saisons. En effet, les gaz SO_2 et NH_3 sont solubles, leurs dépôts secs augmentent considérablement au-dessus des surfaces humides (Erisman et al., 1993 (a, b) ; Erisman and Wyers, 1993 ; Erisman et al., 1994b) et leur dépôt surfacique dépend de l'humidité relative (RH). Les vitesses de dépôt élevées en saison humide sont donc principalement causées par l'absorption non-stomatique de la canopée humide particulièrement dans le cas de SO_2 (Matsuda et al., 2006) et NH_3 . Pour les gaz O_3 et NO_2 , l'écart de V_d entre les deux saisons est faible ; leur absorption à la végétation est contrôlée par l'ouverture stomatique et ils sont adsorbés lentement par les surfaces humides en lien avec leur faible solubilité dans l'eau (Erisman et al., 1994b).

Tableau 4.7 : Vitesses de dépôt sec saisonnières des gaz pour les sites IDAF (2002-2007).

V_d (cm/s)	SO_2		NH_3		O_3		NO_2		HNO_3	
	sèche	humide	sèche	humide	sèche	humide	sèche	humide	sèche	humide
Agoufou	0,17±0,01	0,28±0,03	0,18±0,01	0,31±0,04	0,15±0,01	0,19±0,01	0,13±0,01	0,17±0,01	0,54±0,03	0,96±0,08
Banizoumbou	0,18±0,02	0,30±0,03	0,18±0,03	0,33±0,04	0,15±0,01	0,20±0,01	0,13±0,01	0,18±0,01	0,57±0,11	0,98±0,06
Katibougou	0,25±0,02	0,38±0,04	0,26±0,02	0,44±0,06	0,21±0,01	0,24±0,02	0,18±0,01	0,22±0,03	0,84±0,06	1,30±0,10
Djougou	0,22±0,02	0,37±0,04	0,24±0,02	0,43±0,06	0,18±0,02	0,23±0,02	0,16±0,01	0,22±0,02	0,66±0,08	1,18±0,08
Lamto	0,36±0,04	0,46±0,01	0,43±0,06	0,57±0,02	0,25±0,02	0,32±0,02	0,23±0,03	0,31±0,02	1,07±0,13	1,25±0,04
Zoétéélé	0,61±0,03	0,72±0,06	0,74±0,02	0,87±0,06	0,33±0,01	0,35±0,02	0,31±0,01	0,33±0,02	2,16±0,17	2,21±0,19
Bomassa	0,56±0,02	0,66±0,05	0,68±0,03	0,80±0,06	0,31±0,01	0,34±0,01	0,29±0,01	0,32±0,01	1,98±0,08	2,02±0,12

Le tableau (4.7) montre que les V_d saisonnières des gaz varient selon le domaine végétatif ou climatique. Ainsi pour les sites IDAF des domaines sahélien (Agoufou et Banizoumbou), soudanien (Katibougou et Djougou), guinéen (Lamto) et équatorial forestier (Zoétéélé et Bomassa), les V_d de SO_2 par exemple augmente de 0,17 cm.s^{-1} à 0,6 cm.s^{-1} en saison sèche et de 0,30 cm.s^{-1} à 0,7 cm.s^{-1} en saison humide. De même, les V_d d' O_3 sont de l'ordre de 0,15 cm.s^{-1} à 0,32 cm.s^{-1} en saison sèche et de 0,20 cm.s^{-1} à 0,35 cm.s^{-1} en saison humide.

En savanes humides, les V_d des gaz sont plus élevées à Lamto qu'à Djougou et en savanes sèches, elles sont plus élevées à Katibougou qu'à Agoufou et Banizoumbou. De plus, les V_d

de Katibougou (soudano-sahélien) et Djougou (soudano-guinéen) sont de même ordre de grandeur. Cette remarque est bien perceptible à travers les vitesses de dépôt moyennes annuelles présentées dans le tableau 4.8.

Tableau 4.8 : Vitesses de dépôt moyennes annuelles des gaz au niveau des sites IDAF pour la période 2002-2007.

V _d (cm/s)	SO ₂	NH ₃	O ₃	NO ₂	HNO ₃
Agoufou	0,21±0,02	0,22±0,02	0,16±0,01	0,15±0,01	0,68±0,10
Banizoumbou	0,22±0,01	0,23±0,01	0,16±0,01	0,15±0,01	0,71±0,05
Katibougou	0,29±0,04	0,32±0,04	0,22±0,02	0,20±0,02	0,99±0,17
Djougou	0,31±0,02	0,35±0,02	0,21±0,01	0,20±0,01	0,97±0,07
Lamto	0,42±0,02	0,51±0,02	0,29±0,01	0,28±0,01	1,17±0,06
Zoétéle	0,69±0,02	0,84±0,02	0,35±0,01	0,32±0,01	2,20±0,12
Bomassa	0,64±0,02	0,77±0,02	0,33±0,01	0,31±0,01	2,01±0,04

Rappelons que le site de Lamto est situé dans la savane humide forestière, à la pointe du « V-Baoulé », zone de transition entre la savane et la forêt tropicale ; ce qui lui confère un climat plus humide que Djougou, situé en pleine savane. Ceci explique les V_d des gaz plus élevées à Lamto qu'à Djougou et assez proches des V_d de forêt comme le montre les valeurs de V_d(O₃) de l'ordre de 0,30 cm.s⁻¹ à Lamto et 0,34 cm.s⁻¹ en sites forestiers (Zoétéle et Bomassa). En forêt, les faibles valeurs de V_d d'O₃ et de NO₂ par rapport aux autres gaz (SO₂ et NH₃), et les faibles écarts par rapport aux valeurs calculées pour le site de Lamto (en saison humide), pourraient aussi s'expliquer par l'hypothèse selon laquelle l'absorption stomatique n'est pas très importante pour les canopées humides compte tenu du blocage stomatique par les gouttes d'eau et la présence d'un rayonnement global incident très faible, qui contrôle l'ouverture stomatique (Zhang et al., 2003b). Les valeurs plus élevées des V_d de SO₂ et NH₃ en sites forestiers sont donc dues aux caractères plus humides de la végétation. Les valeurs élevées des V_d de HNO₃ en forêt seraient dues, en plus de l'humidité de la végétation, aux longueurs de rugosité plus élevées en forêts qu'en savanes, le dépôt de HNO₃ étant principalement contrôlé par les résistances aérodynamiques. A titre d'illustration, Zhang et al. (2003b) ont rapporté que pour des conditions de canopées sèches pendant une journée d'été, la valeur de V_d de HNO₃ est supérieure à 1,5 cm.s⁻¹ pour des canopées avec une longueur de rugosité faible et supérieure à 3 cm.s⁻¹ pour les canopées de forêt à forte longueur de rugosité. En savane sèche, les valeurs des V_d des gaz plus élevées à Katibougou s'expliquent naturellement

par le caractère moins sec de ce site par rapport aux sites de Banizoumbou et Agoufou. Nous rappelons que la pluviométrie moyenne annuelle est de 797 mm à Katibougou sur notre période d'étude, de 486 mm à Banizoumbou et de 348 mm à Agoufou.

Peu d'études de V_d spécifiques aux écosystèmes tropicaux existent. Par soucis de comparaison, nous avons conduit une étude bibliographique. L'annexe IV présente les tableaux récapitulatifs des V_d des gaz (NO_2 , NH_3 , HNO_3 , O_3 , SO_2), obtenues pour différents écosystèmes. Pour illustrer la comparaison des V_d calculées pour les écosystèmes africains aux vitesses de dépôt publiées dans la littérature sur différents écosystèmes on peut souligner 3 points :

- Dans la zone sahélienne, Delon et al. (2010) ont simulé avec le modèle ISBA des V_d des gaz azotés (NO_2 , NH_3 , HNO_3) pour l'année 2006. Les V_d moyennes mensuelles varient de 0,1 à 0,33 cm.s^{-1} pour NO_2 , de 0,11 à 0,39 cm.s^{-1} pour NH_3 et de 0,34 à 0,61 cm.s^{-1} pour HNO_3 . Ces valeurs sont comparables aux V_d simulées dans cette étude qui sont de l'ordre de 0,15 cm.s^{-1} pour NO_2 , 0,22 cm.s^{-1} pour NH_3 et 0,7 cm.s^{-1} pour HNO_3 dans le domaine sahélien. De même, Zhang et al. (2002a) ont simulé avec le modèle AURAMS des V_d de NO_2 (0,16 cm.s^{-1}) et de NH_3 (0,15 cm.s^{-1}) pour le désert, valeurs comparables à nos estimations en zone semi-aride.

- Dans la savane humide de Lamto, Serça (1995) a mesuré des vitesses de dépôt sec de NO_2 comprises entre 0,13 et 0,29 cm.s^{-1} comparables aux V_d de NO_2 simulées pour le site Lamto (0,28 cm.s^{-1}).

- Pour les sites forestiers, nous avons présenté en annexe IV-6 une comparaison des vitesses de dépôt diurnes des gaz SO_2 et O_3 . De façon générale, les V_d de SO_2 et O_3 estimées en sites forestiers sont comparables aux valeurs de Matsuda et al., 2006 et Tsai et al., 2010 en forêt tropicale asiatique.

A l'issue de cette comparaison, nous pouvons dire que les vitesses de dépôt simulées dans notre étude sont de même ordre de grandeurs que celles observées ou estimées expérimentalement dans d'autres sites tropicaux. Même si très peu d'études sont disponibles, ces vitesses de dépôt sec des gaz peuvent donc être valablement utilisées pour estimer les flux de dépôt sec pour les sites IDAF.

4.2. Résultats des estimations des flux de dépôt sec

Les flux de dépôt sec du dioxyde d'azote (NO₂), de l'ammoniac (NH₃), de l'acide nitrique (HNO₃), du dioxyde de soufre (SO₂) et de l'ozone (O₃) sont calculés sur des bases mensuelle, saisonnière, annuelle et interannuelle. Ces flux ont été estimés par la méthode inférentielle, c'est-à-dire comme le produit des concentrations ambiantes mesurées à une hauteur spécifique et des vitesses de dépôt sec calculées pour chaque site.

La valeur du flux de dépôt sec peut être calculée à partir de la formule suivante :

$$D_s = C_x \cdot v_d \quad (4.2)$$

Où

D_s : le dépôt sec du gaz ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$). On converti $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ en $\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$ ou en $\text{kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ par la suite ($1 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1} = 10 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$).

C_x : la concentration atmosphérique (moyenne mensuelle) du gaz mesuré ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$).

v_d : la vitesse du dépôt sec ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$).

Il est important de signaler que l'unité des valeurs des concentrations atmosphériques a été convertie du ppb au $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (T=298,15°K), comme suit :

$$1 \text{ ppb (NO}_2\text{)} = 1,8814 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$$

$$1 \text{ ppb (HNO}_3\text{)} = 2,5767 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$$

$$1 \text{ ppb (NH}_3\text{)} = 0,6953 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$$

$$1 \text{ ppb (SO}_2\text{)} = 2,6176 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$$

$$1 \text{ ppb (O}_3\text{)} = 1,9632 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$$

Dans le cadre du réseau IDAF, les concentrations atmosphériques des gaz ont été mesurées dans les différents sites par les capteurs passifs sur une base mensuelle et sur une longue période (en général dix ans, de 1998 à 2007) (Adon et al., 2010). Les vitesses de dépôt sec des gaz représentatives de chaque site spécifique IDAF ont été estimées par le modèle big-leaf de Zhang et al.(2003b) sur une base mensuelle pour chaque année et ont été moyennées sur la période 2002-2007. Les flux mensuels de dépôt sec ont été estimés pour chaque année, et ont ensuite été moyennés sur la période d'étude pour avoir une gamme de flux mensuels de gaz déposés sur chaque site. Le flux moyen annuel est calculé comme la moyenne des flux mensuels moyennés sur la période d'étude.

Cette étude globale des variations des flux de dépôt sec nous permettra de quantifier les flux de gaz azotés représentés par (NO_2 , NH_3 , HNO_3), de dioxyde de soufre et d'ozone sur le transect d'écosystème savanes sèches-savanes humides-forêts.

4.2.1. Flux de dépôt sec des gaz azotés (NO_2 , HNO_3 et NH_3)

Nous avons vu au chapitre 3 que l'évolution des concentrations mensuelles des gaz est similaire dans un même écosystème et que les concentrations sont plus élevées pendant la saison humide en savanes sèches et inversement pendant la saison sèche en savanes humides et de même ordre de grandeur entre les deux saisons en forêts (Adon et al., 2010). De même, les vitesses de dépôt sec des gaz simulées par le modèle de Zhang et al. (2003b) ont montré que d'une façon générale, les V_d mensuelles sont plus élevées en saison humide dans chaque écosystème. Pour montrer l'influence des concentrations atmosphériques des gaz azotés sur l'évolution mensuelle des flux de dépôt sec, nous présentons sur les différentes figures les variations mensuelles moyennes à la fois des flux de dépôt sec et des concentrations sur le transect savane sèches-savanes humides-forêts. Le tableau (4.9) présente les valeurs des flux de dépôt saisonniers et annuels moyens des gaz azotés sur la période d'étude (1998-2007) pour toutes les stations IDAF. Nous rappelons que, la saison humide s'étend de Mai/Juin à Septembre en savanes sèches (Mai étant un mois de transition), d'Avril à Octobre en savanes humides et de Mars à Novembre en forêts ; les autres mois constituent la saison sèche. Les flux de dépôt sec des gaz azotés sont exprimés en $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ pour être comparés aux valeurs de la littérature (Annexe V).

4.2.1.1. Flux de dépôt sec d'azote par NO_2

L'évolution mensuelle des flux de dépôt sec d'azote par NO_2 (N-NO_2) sur le transect est représentée sur la figure (4.6). La courbe (rouge) présente l'évolution mensuelle des concentrations de NO_2 auxquelles nous nous référons pour interpréter les flux de dépôt sec. Nous remarquons une forte corrélation entre les concentrations des gaz et les flux de dépôt sec.

En savanes sèches, les valeurs des flux de dépôt sec mensuels moyens (1998-2007) de NO_2 varient de $0,12\pm 0,08$ à $1,27\pm 0,29$ $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$. Les valeurs maximales des flux sont obtenues en Juin (au début la saison humide) tout comme les valeurs maximales des concentrations (figure 4.6).

Le dépôt sec de N-NO₂ est plus important en saison humide avec des valeurs moyennes de 0,93±0,25 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ (Banizoumbou), 0,78±0,24 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ (Katibougou) et 0,75±0,24 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ (Agoufou). En saison sèche, les flux présentent des valeurs de 0,41±0,23 kgN.ha⁻¹.an⁻¹, 0,59±0,16 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ et 0,29±0,12 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ respectivement à Banizoumbou, Katibougou et Agoufou. Pour les sites de Banizoumbou et Agoufou, le flux moyen de dépôt sec est 2 fois plus important en saison humide qu'en saison sèche. D'une façon générale, les plus fortes valeurs de flux de dépôt sec observées en saison humide s'expliquent à la fois, par les maxima de concentrations de NO₂ mesurées, et par les fortes vitesses de dépôt sec calculées en cette saison. En effet, comme nous l'avons expliqué dans l'étude des concentrations de NO₂, les émissions biogéniques de NO sont très importantes au début de la saison humide en savanes sèches, par le phénomène d'effet « pulse » (forte et brève augmentation des émissions NO suite à un épisode de pluie sur des sols très secs) (Johansson et al., 1988 ; Yienger and Levy, 1995). Les émissions biogéniques de NO lors des premières pluies au début de la saison humide sont beaucoup plus importantes à Banizoumbou (Delon et al., 2010) d'où la plus forte valeur de flux de dépôt sec de NO₂ (0,93 kgN.ha⁻¹.an⁻¹) pendant la saison humide sur le transect (tableau 4.9).

Le flux de dépôt sec moyen annuel sur la période 1998-2007 est de 0,6±0,1 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ à Banizoumbou et de 0,7±0,1 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ à Katibougou, et sur la période 2005-2009 est de 0,4±0,1 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ à Agoufou (tableau 4.9).

En savanes humides, les valeurs des flux moyens mensuels de dépôt sec de NO₂ varient de 0,17±0,01 à 1,11±0,11 kgN.ha⁻¹.an⁻¹. Les plus fortes valeurs de dépôt sec sont observées en saison sèche avec des valeurs maximales en Janvier à Lamto et en Décembre à Djougou, tout comme les concentrations de NO₂ (figure 4.6). En effet, en savanes humides, où la densité de biomasse est plus importante qu'en savanes sèches, la combustion de biomasse est une source très importante pour les flux d'émissions des NO_x (NO+NO₂) pendant la saison sèche et cette source (feu) est très active en Janvier à Lamto et en Décembre à Djougou, comme nous l'avons expliqué dans le chapitre 3.

En savane humide, les flux moyens saisonniers de dépôt sec de NO₂ sont de 0,57 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison sèche et 0,25-0,37 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison humide. En saison sèche, les flux sont environ 1,5 fois plus élevés à Lamto et 2,3 fois plus élevés à Djougou par rapport à la saison humide. Les flux de dépôt sec moyens annuels sont de même ordre de grandeur (0,4 kgN.ha⁻¹.an⁻¹) pour les stations de Lamto et de Djougou représentatives de la savane humide (tableau 4.9).

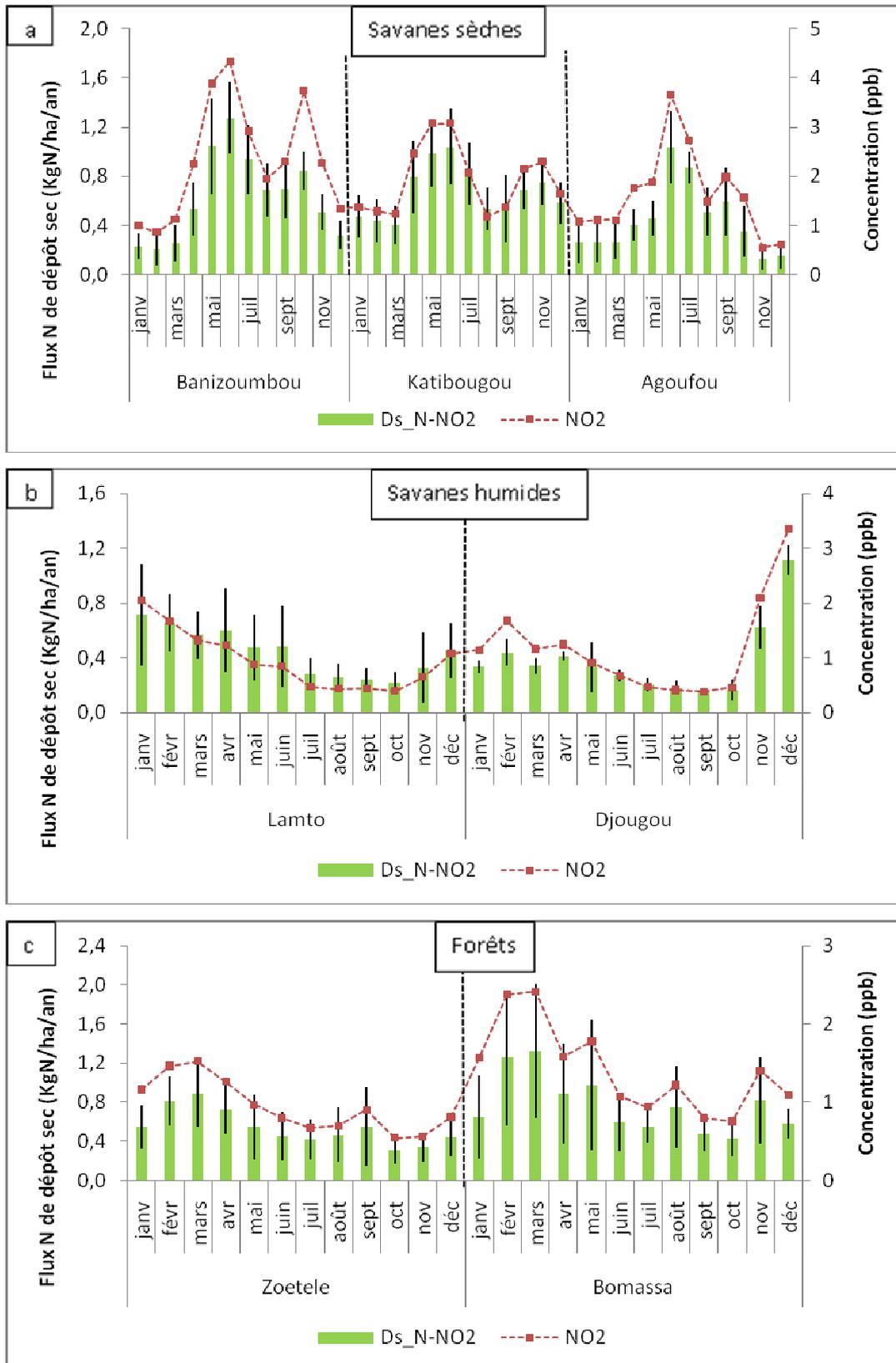


Figure 4.6 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'azote (1998-2007) par NO₂ (N-NO₂) sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations NO₂.

Tableau 4.9 : Flux de dépôt sec moyens saisonniers et annuels d'azote ($\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) sous forme de NO_2 , HNO_3 et NH_3 dans les stations IDAF (d'Afrique de l'Ouest et Centrale) sur la période 1998-2007.

Dépôt sec ($\text{KgN}/\text{ha}/\text{an}$)		N- NO_2			N- HNO_3			N- NH_3			Total N
		Sèche	humide	Annuelle	Sèche	humide	annuelle	Sèche	humide	Annuelle	annuelle
Savanes sèches	Banizoumbou	0,41±0,23	0,93±0,25	0,6±0,1	0,17±0,09	1,40±0,43	0,7±0,3	1,66±0,69	4,21±0,72	2,7±0,9	4,0
	Katibougou	0,59±0,16	0,78±0,24	0,7±0,1	0,36±0,13	1,35±0,52	0,8±0,2	2,54±1,01	5,74±0,96	3,9±0,6	5,3
	Agoufou*	0,29±0,12	0,75±0,24	0,4±0,1	0,14±0,09	1,74±0,80	0,7±0,1	2,06±0,63	4,52±0,24	2,9±0,3	4,0
Savanes hmides	Lamto	0,54±0,16	0,37±0,15	0,4±0,1	0,90±0,29	0,59±0,17	0,7±0,1	3,91±1,29	3,07±0,52	3,4±1,0	4,6
	Djougou*	0,57±0,32	0,25±0,10	0,4±0,0	0,54±0,19	0,79±0,27	0,7±0,2	2,11±0,57	2,45±0,67	2,3±0,8	3,4
Forêts	Zoétéélé	0,60±0,19	0,52±0,19	0,5±0,1	1,66±0,63	0,75±0,23	1,0±0,3	5,91±0,95	6,61±1,57	6,4±1,5	8,0
	Bomassa	0,83±0,37	0,76±0,28	0,8±0,2	1,10±0,17	0,91±0,13	1,0±0,3	6,69±1,99	6,73±1,14	6,7±2,3	8,5

*Les valeurs des flux de dépôt sec d'Agoufou et Djougou sont moyennées sur la période 2005-2009.

En forêts, les flux de dépôt sec mensuels moyens de NO₂ sont compris entre 0,31±0,15 et 1,32±0,69 kgN.ha⁻¹.an⁻¹. Les plus fortes valeurs des flux de dépôt et des concentrations de NO₂ sont observées en Février et Mars, c'est-à-dire à la fin de la saison sèche et au début de la saison humide (figure 4.6). Les flux moyens saisonniers de dépôt sec de NO₂ sont de même ordre de grandeur avec des valeurs de 0,6-0,8 en saison sèche et 0,5-0,76 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison humide. D'une façon générale, les flux d'émissions biogéniques et de combustion de biomasse sont tous deux importants en forêts et proportionnels en terme d'émission des NO_x mais avec une source feux de forêt plus active en saison sèche. Tout comme la savane humide, l'écart de flux de dépôt sec entre les deux saisons en forêts est réduit par une vitesse de dépôt sec plus élevée en saison humide. Le dépôt sec moyen annuel de NO₂ est de 0,5±0,1 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ à Zoétéélé et de 0,8±0,2 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ à Bomassa.

Les valeurs des flux de dépôt de NO₂ estimées dans les sites forestiers sont bien dans la gamme des mesures obtenues par Hanson et al. (1989), qui ont montré que les dépôts d'azote sous forme de NO₂ étaient compris entre 0,08 et 1,9 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ pour les forêts naturelles et peuvent atteindre 12 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ pour le couvert forestier en milieu urbain (Zhang et al., 2005). Ces valeurs sont aussi comparables à celles estimées par Zhang et al. (2005), qui varient de 0,1 à 1,5 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ dans sept sites ruraux canadiens (dont certains sites forestiers) sur une période d'un an.

Sur le transect des écosystèmes, les valeurs des flux moyens de dépôt sec de NO₂ sont plus élevées pendant la saison humide en savanes sèches, pendant la saison sèche en savanes humides et de même ordre de grandeur en forêts. Le dépôt sec moyen annuel de NO₂ varie de 0,4±0,1 à 0,7±0,1 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, est de l'ordre de 0,4±0,1 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes humides, et varie de 0,5±0,1 à 0,8±0,2 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts (tableau 4.9). Nous notons que le flux moyen annuel de dépôt sec de NO₂ est aussi important en savanes sèches qu'en savanes humides et en forêts avec un gradient de vitesses de dépôt sec et de concentrations différent.

4.2.1.2. Flux de dépôt sec d'azote par HNO₃

La figure (4.7) illustre l'évolution des flux de dépôt sec mensuels moyens d'azote par HNO₃ (N-HNO₃) sur le transect, et l'évolution des concentrations de HNO₃.

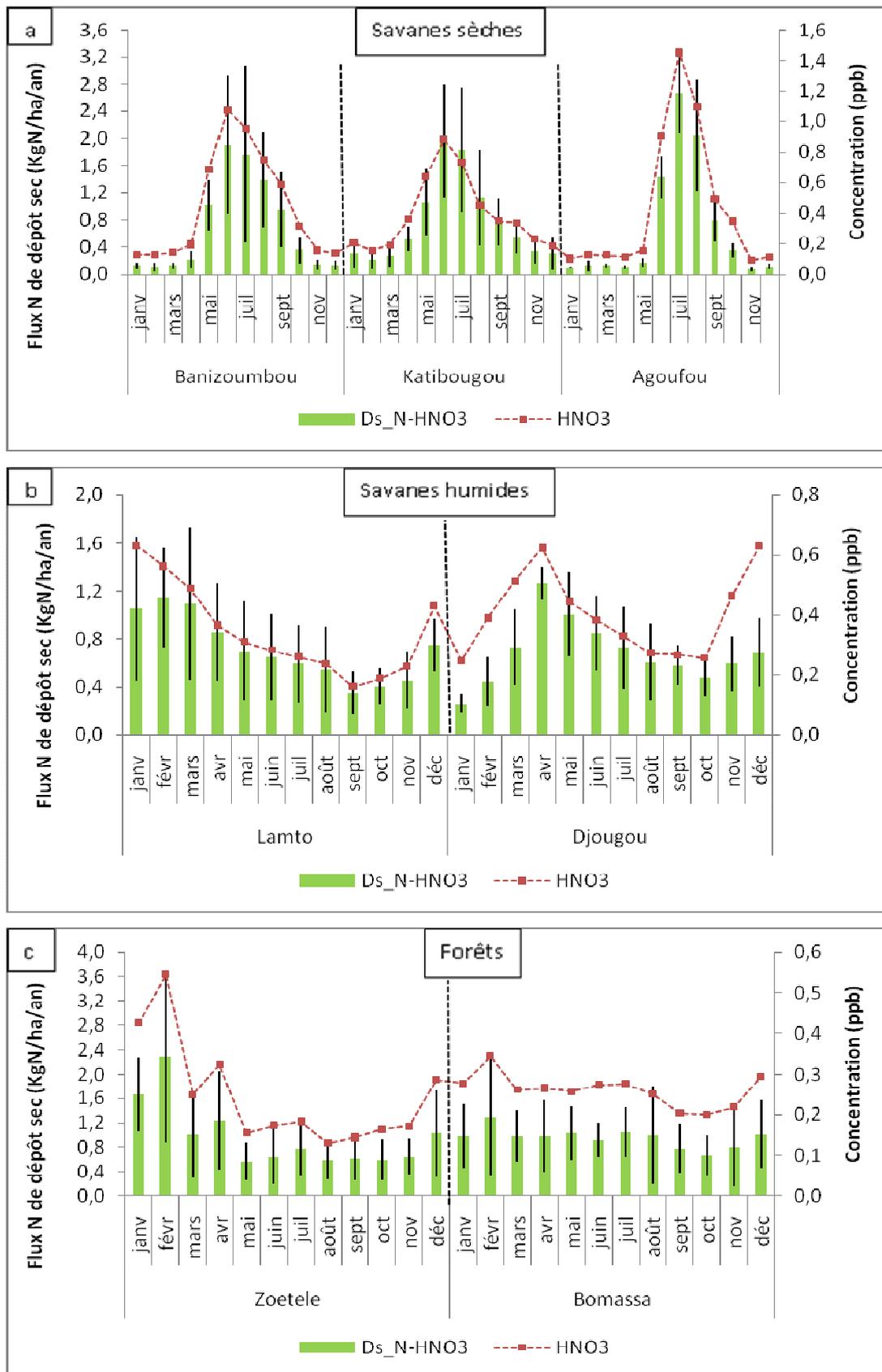


Figure 4.7 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'azote (1998-2007) par HNO₃ (N-HNO₃) sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations HNO₃.

Comme pour le NO₂, les flux de dépôt sec de HNO₃ sont proportionnels aux concentrations de HNO₃ sur le transect savanes sèches-savanes humides-forêts, et leurs évolutions mensuelles sont similaires. Les valeurs moyennes des flux de dépôt sec mensuels de HNO₃ varient de 0,08±0,02 à 2,67±0,59 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, de 0,26±0,08 à 1,26±0,13 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes humides et de 0,57±0,31 à 2,29±1,41 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts.

En savanes sèches, le dépôt sec de HNO₃ est très faible en saison sèche, surtout à Agoufou et Banizoumbou, et beaucoup plus important en saison humide pour toutes les 3 stations. Les flux moyens saisonniers de dépôt sec varient de 0,14±0,09 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison sèche à 1,74±0,80 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison humide.

En savanes humides, les moyennes saisonnières des flux de dépôt sec sont de 0,90±0,29 et 0,54±0,27 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison sèche et de 0,59±0,27 et 0,79±0,27 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison humide respectivement à Lamto et à Djougou. Le rapport des flux entre les deux saisons (sèche/humide) est faible (environ 1,5 à Lamto et 0,7 à Djougou) avec des valeurs plus élevées en saison sèche à Lamto et inversement en saison humide à Djougou. Le rapport entre les concentrations moyennes saisonnières de HNO₃ est aussi faible (1,6 à Lamto et 1,3 à Djougou) mais avec des valeurs légèrement plus élevées en saison sèche dans les deux stations. Le flux moins important en saison sèche à Djougou s'explique par une vitesse de dépôt sec de HNO₃ plus faible en cette saison (figure 4.5 et tableau 4.7).

En forêts, les flux saisonniers moyens de dépôt sec sont de 1,66±0,63 et 1,10±0,17 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison sèche, et de 0,75±0,23 et 0,91±0,13 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en saison humide respectivement à Zoétéélé et à Bomassa. L'écart des valeurs des flux entre les deux saisons est faible pour le site de Bomassa, mais important pour Zoétéélé où les flux sont deux fois plus élevés en saison sèche.

Peu de mesures de flux de dépôt sec de HNO₃ existent pour les écosystèmes tropicaux. Huebert and Robert (1985) ont mesuré le flux de dépôt d'acide nitrique dans un pâturage près de Champaign, en Illinois (Etats Unis) pendant le mois de juin en 1982. Le flux de dépôt sec mensuel de HNO₃ a été estimé à 1,1-1,4 kg/ha/mois (soit environ 2,93-3,75 kgN.ha⁻¹.an⁻¹). Ce flux est comparable aux flux de dépôt sec mensuels estimés dans les zones agro pastorales des savanes sèches pendant la saison humide où les flux mensuels peuvent atteindre la valeur de 2,67 kgN.ha⁻¹.an⁻¹.

Les moyennes annuelles des flux de dépôt sec de HNO_3 sont de l'ordre de $0,7 \pm 0,3 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savanes sèches et humides et de $1,0 \pm 0,3 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en forêts (tableau 4.9). Le flux moyen annuel de dépôt sec de HNO_3 présente une faible variabilité selon les écosystèmes avec des différences saisonnières surtout marquées en savanes sèches.

4.2.1.3. Flux de dépôt sec d'azote par NH_3

L'évolution des flux moyens de dépôt sec mensuels d'azote (1998-2007) sous forme de NH_3 (N-NH_3) et l'évolution des concentrations mensuelles de NH_3 sur le transect d'écosystèmes sont présentées sur la figure 4.8(a,b,c). L'évolution mensuelle des flux de dépôt sec de NH_3 est comparable à celle des concentrations mais est influencée par les vitesses de dépôt sec. Ainsi en savanes humides, alors que les concentrations sont élevées au début de la saison sèche (janvier-mars), les flux mensuels de dépôt sec semblent être de même ordre de grandeur entre les deux saisons. Le dépôt sec de l'ammoniac est important sur les surfaces (végétatives) humides.

Sur le transect, les valeurs des flux de dépôt sec mensuels de NH_3 sont comprises entre $1,01 \pm 0,48$ et $7,06 \pm 2,16 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savanes sèches, entre $1,24 \pm 0,60$ et $5,43 \pm 2,26 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savanes humides et entre $4,38 \pm 1,53$ et $9,04 \pm 2,71 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en forêts.

En savanes sèches, les moyennes saisonnières des flux de dépôt sec de NH_3 sont environ 2 fois plus élevées en saison humide ($4,21$ - $5,74 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) qu'en saison sèche ($1,66$ - $2,54 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$). Signalons qu'en saison humide, les concentrations de NH_3 étaient environ 1,4 fois plus élevées et les vitesses de dépôt sec 1,7 fois. Le dépôt important de l'ammoniac en saison humide est donc fortement influencé par la vitesse de dépôt sec. Les flux de dépôt sec sont plus importants à Katibougou car les vitesses de dépôt sec de NH_3 y sont plus élevées. Les savanes sèches étant généralement des zones agro-pastorales, les principales sources d'ammoniac sont la décomposition bactérienne des excréments d'animaux, très active en saison humide avec l'hydrolyse de l'urée, et les émissions par les sols naturels et fertilisés (Schlesinger and Hartley, 1992, Bouwman et al., 1997, Bouwman et al., 2002a).

En savanes sèches, les flux moyens annuels de dépôt sec de NH_3 sont de $2,7 \pm 0,9 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Banizoumbou, $3,9 \pm 0,6 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Katibougou et $2,9 \pm 0,3 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Agoufou.

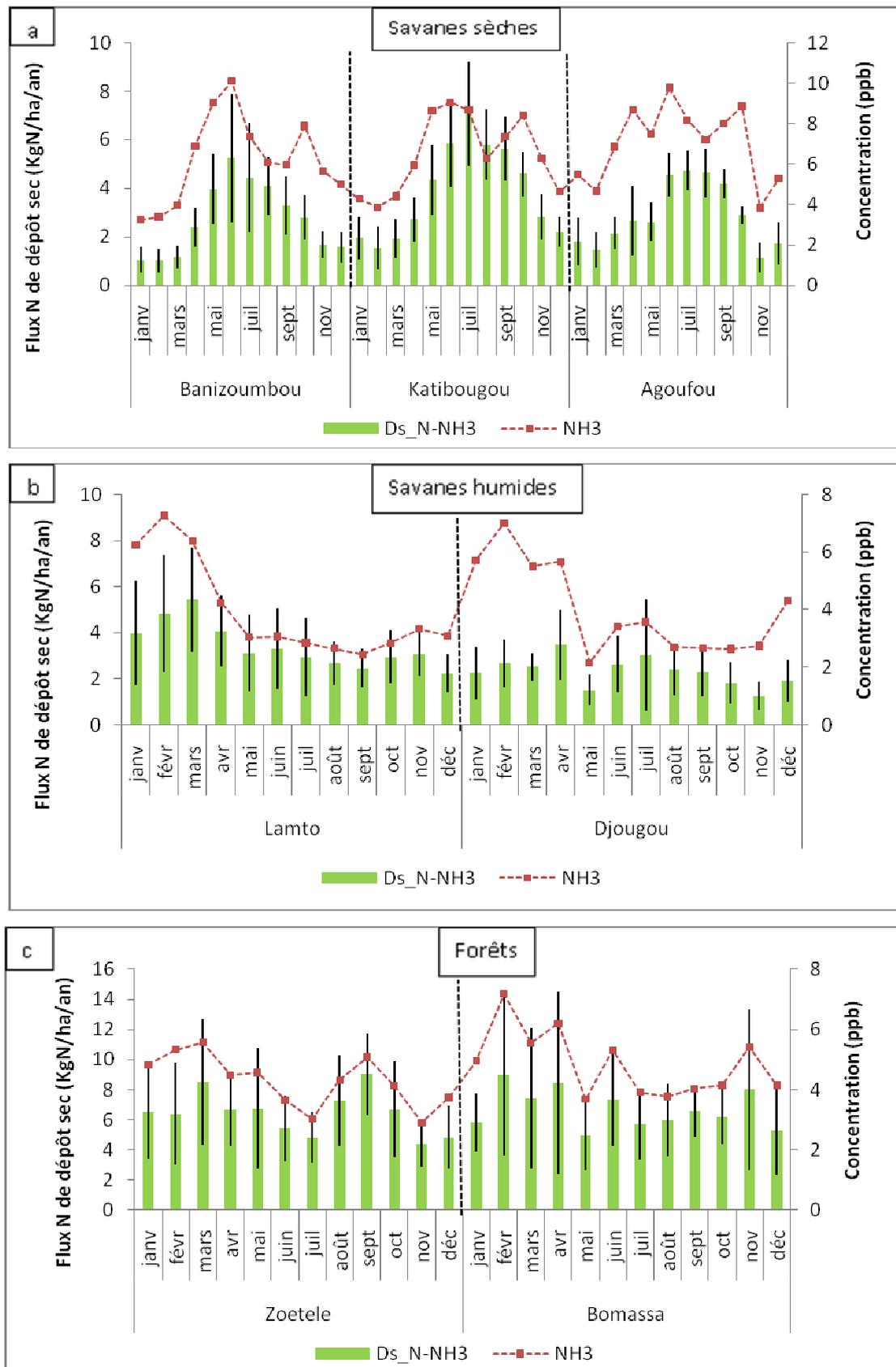


Figure 4.8 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'azote (1998-2007) par NH₃ (N-NH₃) sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations NH₃.

Delon et al. (2010) ont estimé, à partir des excréments d'animaux domestiques, les émissions de NH_3 dans les 3 sites sahéliens du réseau IDAF pour l'année 2006. Les flux moyens annuels N-NH_3 émis par volatilisation sont compris entre $3,9 \pm 2,2$ et $12,8 \pm 6,6 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savanes sèches. Bouwman et al. (1997) ont estimé les émissions de NH_3 par la source animale entre 0,5 et 5 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ dans la bande sahélienne pour l'année 1990. Généralement, toute la quantité d'ammoniac émise retourne à la surface par dépôt (sec et humide) (Bouwman et al., 2002a).

Ces valeurs de NH_3 émis sont donc comparables aux flux de dépôt sec estimés en savanes sèches, sachant qu'une partie du NH_3 est déposée par les processus de dépôt humide et par dépôt sec sous forme particulaire.

En savanes humides, les moyennes saisonnières des flux de dépôt sec de NH_3 sont de $3,91 \pm 1,29 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et $3,07 \pm 0,52 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Lamto, et de $2,11 \pm 0,57 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et $2,45 \pm 0,67 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Djougou respectivement en saison sèche et en saison humide. Ces flux sont de même ordre de grandeur pour les deux saisons alors que les concentrations de NH_3 sont environ 1,7 fois plus élevées en saison sèche, les feux de savanes étant aussi une source importante d'émission de flux de NH_3 à cette période (Lobert et al., 1990 ; Delmas et al., 1995). Les vitesses de dépôt sec de NH_3 , 1,8 fois plus élevées à Djougou et 1,3 fois à Lamto en saison humide, expliquent la forte réduction de l'écart des flux de dépôt sec entre les deux saisons (sèche et humide). En savanes humides, les moyennes annuelles des flux de dépôt sec sont de $3,4 \pm 1,0 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et $2,3 \pm 0,8 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ respectivement à Lamto et à Djougou.

En forêts, les moyennes saisonnières des flux de dépôt sec de NH_3 sont de même ordre de grandeur avec des valeurs $5,91 \pm 0,95 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et $6,61 \pm 1,57 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Zoétéélé, et $6,69 \pm 1,99 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et $6,73 \pm 1,14 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Bomassa, respectivement en saison sèche et en saison humide. Les concentrations et les vitesses de dépôt sec de NH_3 sont également de même ordre de grandeur entre les deux saisons. En forêts, les flux moyens annuels de dépôt sec de NH_3 sont de $6,4 \pm 1,5 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Zoétéélé et $6,7 \pm 2,3 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Bomassa.

Sur le transect des écosystèmes, les moyennes annuelles des flux de dépôt sec de NH_3 sont comprises entre 2,7 et 3,9 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savanes sèches, entre 2,3 et 3,4 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savanes humides et sont de l'ordre de 6,5 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en forêts (tableau 4.9). Le flux de dépôt sec de NH_3 est environ deux fois moins élevé en savanes (sèches et humides) qu'en forêts alors qu'un gradient de concentrations positif des forêts (4-5 ppb) vers les savanes sèches (6-7 ppb) a été mesuré sur le transect. Ceci met en évidence le gradient inverse des

vitesse de dépôt sec de NH_3 sur le transect avec des valeurs doubles en forêts ($0,8 \text{ cm.s}^{-1}$) comparées à celles des savanes sèches ($0,2-0,3 \text{ cm.s}^{-1}$) qui inverse les valeurs des flux.

Ces estimations des flux de dépôt sec d'azote par NO_2 , HNO_3 et NH_3 sur le transect nous a permis de faire un bilan partiel de la quantité totale d'azote déposée sous forme gazeuse présenté ci-dessous.

4.2.1.4. Flux de dépôt sec total d'azote sous forme gazeuse (NO_2 , HNO_3 et NH_3)

Le dépôt sec total d'azote sous forme gazeuse est calculé comme la somme des flux de dépôt sec de chaque gaz azoté étudié (NO_2 , HNO_3 , NH_3). L'évolution mensuelle moyenne (1998-2007) du dépôt sec total d'azote par NO_2 , HNO_3 et NH_3 pour tous les sites IDAF et sur le transect savanes sèches-savanes humides-forêts est présentée sur la figure 4.9.

Le dépôt sec mensuel total d'azote ($\text{N-NO}_2 + \text{N-HNO}_3 + \text{N-NH}_3$) varie de $1,3$ à $9,7 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$, en savanes sèches, de $2,5$ à $7,1 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savane humide et de $5,4$ à $11,5 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en forêts.

La figure 4.10 et le tableaux 4.10 présentent les résultats des valeurs du dépôt sec total annuel d'azote par NO_2 , HNO_3 et NH_3 sur la période d'étude (1998-2007) et leur contribution en pourcentage au dépôt sec total d'azote.

Tableau 4.10 : Flux de dépôt sec moyen annuel d'azote ($\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) sous forme de NO_2 , HNO_3 et NH_3 (avec leur contribution en pourcentage au dépôt sec total) sur les sites IDAF pour la période 1998-2007.

Ds (KgN/ha/an)		N-NO_2	N-HNO_3	N-NH_3	cumul N
Savanes sèches	Banizoumbou	0,6±0,1 (16%)	0,7±0,3 (17%)	2,7±0,3 (67%)	4,0
	Katibougou	0,7±0,1 (13%)	0,8±0,2 (14%)	3,9±0,6 (73%)	5,3
	Agoufou*	0,4±0,1 (11%)	0,7±0,1 (17%)	2,9±0,3 (72%)	4,0
Savanes humides	Lamto	0,4±0,1 (9%)	0,7±0,1 (16%)	3,4±1,0 (75%)	4,6
	Djougou*	0,4±0,0 (11%)	0,7±0,2 (20%)	2,3±0,8 (69%)	3,4
Forêts	Zoétéélé	0,5±0,1 (7%)	1,0±0,3 (12%)	6,4±1,5 (81%)	8,0
	Bomassa	0,8±0,2 (9%)	1,0±0,3 (11%)	6,7±2,3 (80%)	8,5

*pour Agoufou et Djougou, la période d'étude est 2005-2009.

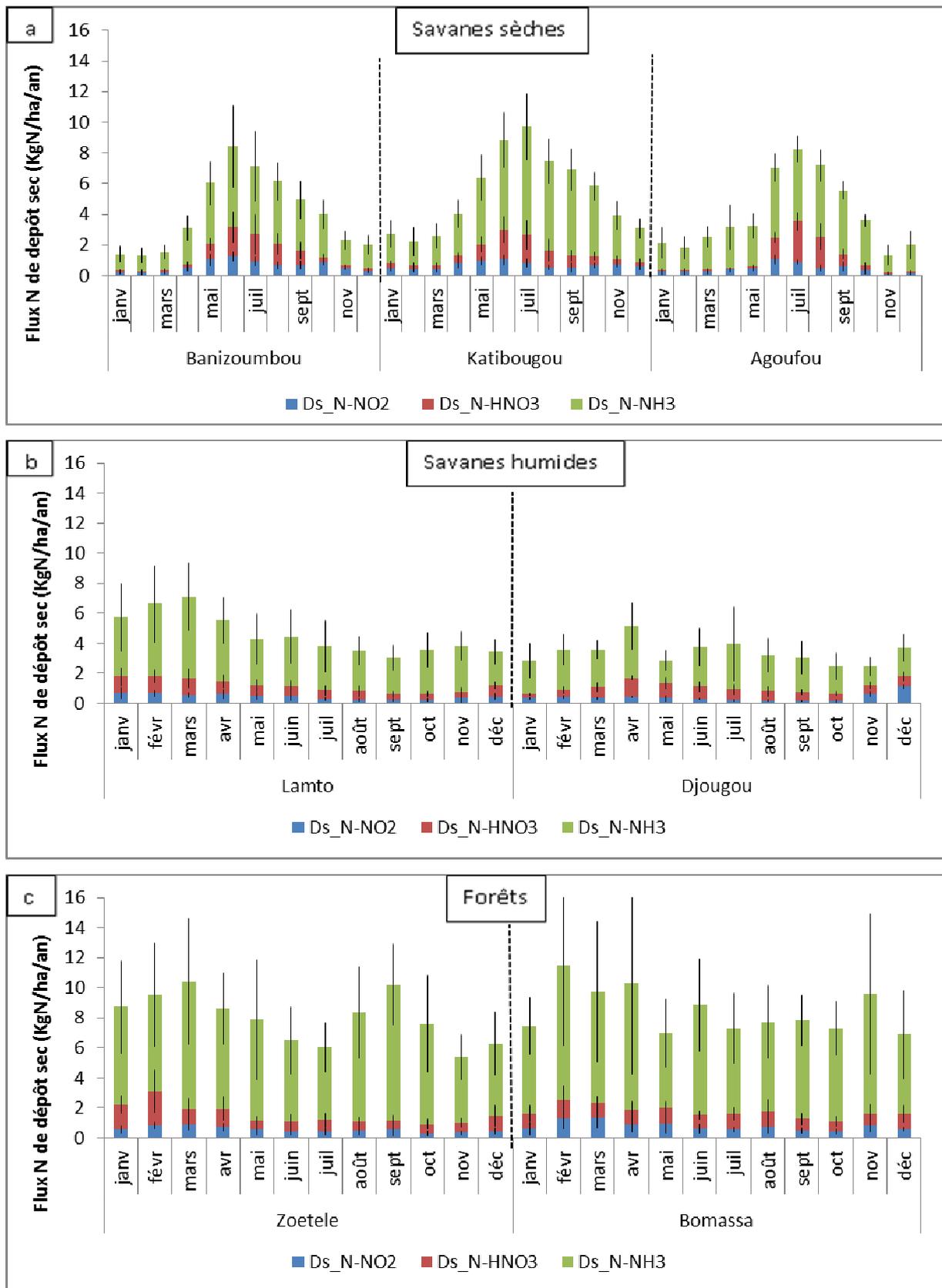


Figure 4.9 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec total d'azote (1998-2007) par NO_2 , HNO_3 et NH_3 sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c).

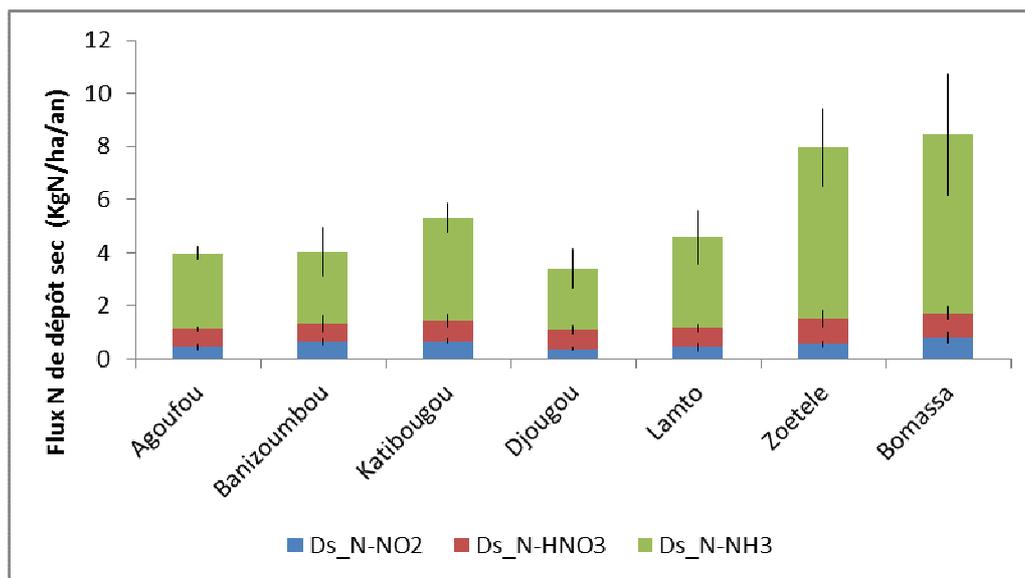


Figure 4.10 : Flux moyens annuels de dépôt sec d'azote sous forme de NO_2 , HNO_3 et NH_3 sur la période d'étude (1998-2007) dans les stations IDAF.

Sur le transect, le dépôt sec annuel total d'azote est beaucoup plus important en forêt (8,0-8,5 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) à cause de la plus grande quantité d'azote déposé par NH_3 et il est du même ordre de grandeur en savanes humides (3,4-4,6 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) et en savanes sèches (4-5,3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$).

Nous remarquons que l'azote se dépose majoritairement sous forme de NH_3 sur le transect d'écosystème et représente 67-80% du dépôt total d'azote. Les dépôts secs d'azote sous forme de NO_2 et HNO_3 sont du même ordre de grandeur respectivement 7-16% et 11-20% (tableau 4.10).

Une synthèse de références bibliographiques sur le dépôt sec de chaque gaz azoté (NO_2 , HNO_3 , NH_3) dans différents écosystèmes est présentée à l'annexe V. Nous notons que dans ces écosystèmes, les flux de dépôt sec d'azote varient de 1,1 à 17,9 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ sous forme de NH_3 , de 0,53 à 3,73 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ sous forme de HNO_3 , et de 0,4 à 12 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ sous forme de NO_2 . Ces valeurs sont plus ou moins comparables aux flux de dépôt d'azote dans les écosystèmes africains bien que les périodes de mesures soient différentes. Nous rappelons que sur le transect des écosystèmes africains, les flux de dépôt sec moyens mensuels varient de 1 à 9 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ sous forme de NH_3 , de 0,1 à 2,67 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ sous forme de HNO_3 , et de 0,1 à 1,3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ sous forme de NO_2 . Ces valeurs sont non négligeables comparées aux valeurs mesurées en Europe (annexe V).

4.2.2. Flux de dépôt sec d'ozone (O₃)

L'évolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'O₃ (2001-2007) sur le transect est représentée à la figure (4.11). Nous y avons ajouté l'évolution mensuelle des concentrations d'O₃. D'une façon générale, nous remarquons que l'évolution mensuelle des flux de dépôt sec d'O₃ est similaire à celle des concentrations d'ozone, comme dans le cas de NO₂. Les moyennes mensuelles des flux de dépôt sec d'O₃ varient de 2,9±0,4 à 30,3±2,3 kg.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, de 11,6±4,3 à 22,2±2,2 kg.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes humides et de 6,3±1,7 à 14,9±6,3 kg.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts.

En savanes sèches, le dépôt sec d'ozone est plus important pendant la saison humide car, à la fois, les concentrations et les vitesses de dépôt sec d'O₃ sont plus élevées en cette saison. Les moyennes saisonnières sont de 7,2±2,0 et 20,5±3,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Banizoumbou, 13,2±3,6 et 23,6±2,5 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Katibougou, et 6,4±4,1 et 21,1±2,7 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Agoufou respectivement en saison sèche et en saison humide. Nous remarquons que les valeurs moyennes saisonnières des flux de dépôt sec d'O₃ sont environ 3 fois plus élevées en saison humide qu'en saison sèche pour les stations de Banizoumbou et Agoufou.

En savanes humides, les flux moyens saisonniers de dépôt sec d'O₃ sont de même ordre de grandeur avec des valeurs 20,1±1,5 et 18,5±3,3 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Lamto, et 16,4±3,5 et 18,3±4,0 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Djougou, respectivement en saison sèche et en saison humide. L'écart du dépôt d'O₃ entre les saisons est réduit par les vitesses de dépôt sec élevées en saison humide et les concentrations élevées en saison sèche.

En forêts, les flux moyens saisonniers de dépôt sec d'O₃ sont de 14,8±0,2 et 8,7±2,1 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Zoétélé et de 7,8±1,1 et 8,3±1,2 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Bomassa, respectivement en saison sèche et en saison humide. Nous remarquons que ces flux ne sont pas marqués par les saisons humide et sèche à Bomassa ; par contre ils sont plus élevés en saison sèche à Zoétélé, dûs aux concentrations d'O₃ plus élevées à cette saison.

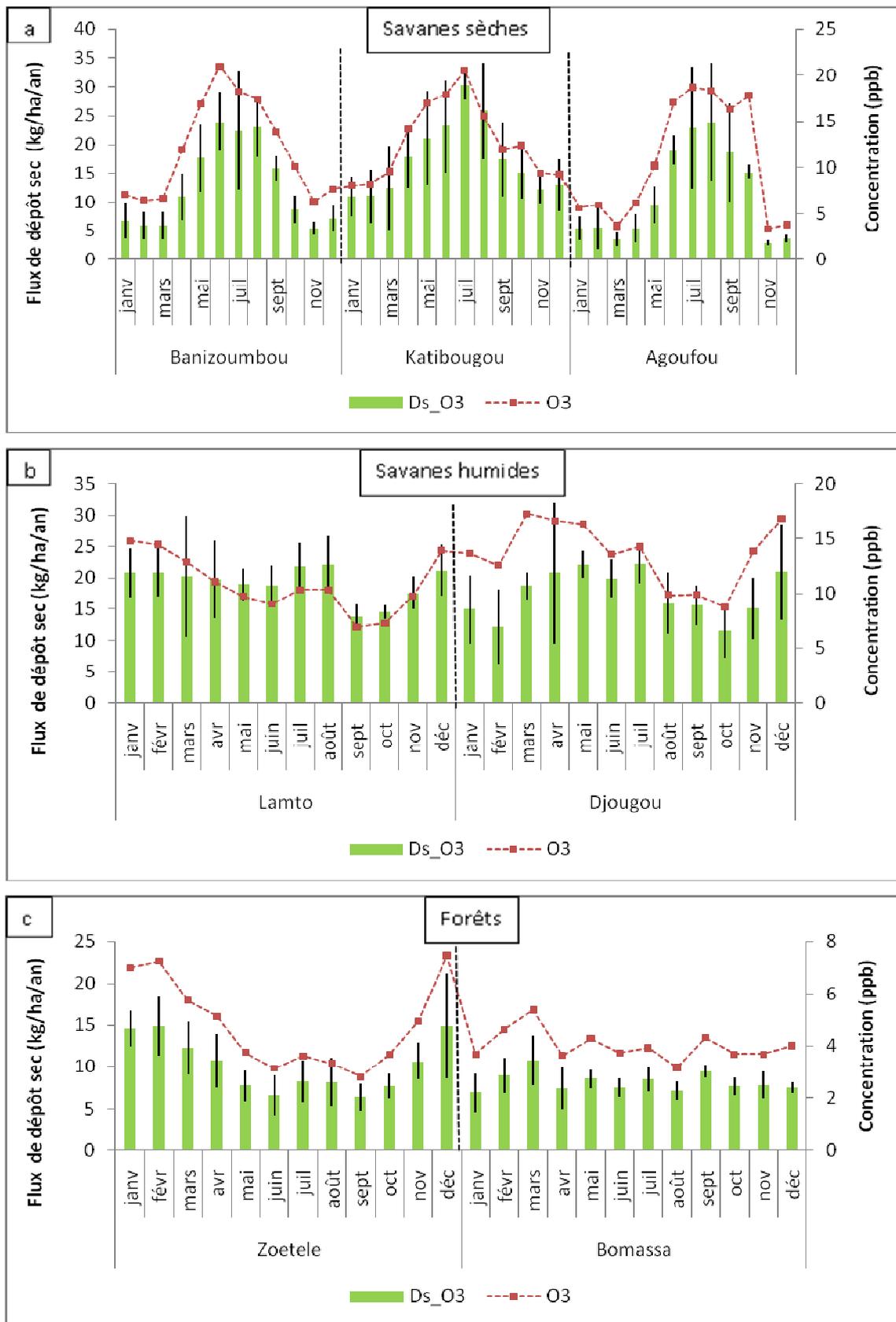


Figure 4.11 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d’ozone (Ds_O₃) (2001-2007) sur le transect savane sèche (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l’évolution des concentrations O₃.

Les moyennes annuelles des flux de dépôt sec d'O₃ sur la période d'étude (2001-2007) sont, en savanes sèches de 11,3±4,7 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Agoufou, 12,8±2,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Banizoumbou et 17,5±3,0 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Katibougou, en savanes humides de 17,5±3,0 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Djougou et 19,2±2,9 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Lamto, et en forêts de 10,2±2,1 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Zoétéélé et 8,2±0,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ à Bomassa. Les faibles valeurs des flux de dépôt sec d'O₃ en forêts sont corrélées aux faibles valeurs des concentrations qui étaient de 2 à 3 fois plus faibles que celles mesurées dans les autres écosystèmes. Les concentrations moyennes annuelles d'O₃ étaient de l'ordre 11-14 ppb en savanes (sèches et humides) et 4-5 ppb en forêts. Nous remarquons aussi qu'en savanes, les valeurs des flux moyens annuels de dépôt sec sont moins élevées à Agoufou et Banizoumbou, dues aux faibles couvertures végétales de la zone sahélienne (donc faible vitesse de dépôt sec).

Peu d'études observationnelles des flux de dépôt d'O₃ (à long terme) sont disponibles en régions tropicales. Bien que les mesures des flux d'ozone sur les savanes tropicales africaines soient rares, plusieurs études ont été menées sur la forêt tropicale (Cros et al., 1992, 2000 ; Andreae et al., 1992, Rummel et al., 2007 ; Matsuda et al., 2005,...) ; mais ces études ne concernent que l'évolution diurne du flux de dépôt d'O₃. Les valeurs horaires ou journalières de ces flux ne sont donc pas comparables aux valeurs mensuelles et annuelles des flux d'O₃ estimés dans cette étude. A titre indicatif, un tableau récapitulatif de l'ensemble des données bibliographiques sur le flux de dépôt sec d'ozone en régions tropicales est présenté en annexe V-2.

4.2.3. Flux de dépôt sec du dioxyde de soufre (SO₂)

L'évolution des flux moyens mensuels de dépôt sec de soufre (2002-2007) sous forme de SO₂ (S-SO₂) sur le transect, ainsi que l'évolution des concentrations mensuelles de SO₂, est présentée sur la figure (4.12).

Le mode d'évolution mensuelle des flux de dépôt de SO₂ est globalement comparable à celui des concentrations. Les flux moyens mensuels de dépôt sec sont compris entre 0,21±0,16 et 1,17±0,71 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, entre 0,38±0,24 et 1,39±0,42 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes humides et entre 0,42±0,24 et 1,57±1,55 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts. Nous remarquons que l'écart type des flux par rapport à la moyenne mensuelle est important (figure 4.12). En effet, les concentrations mensuelles de SO₂ mesurées dans les sites IDAF sont faibles et varient fortement d'une année à une autre pour un même mois.

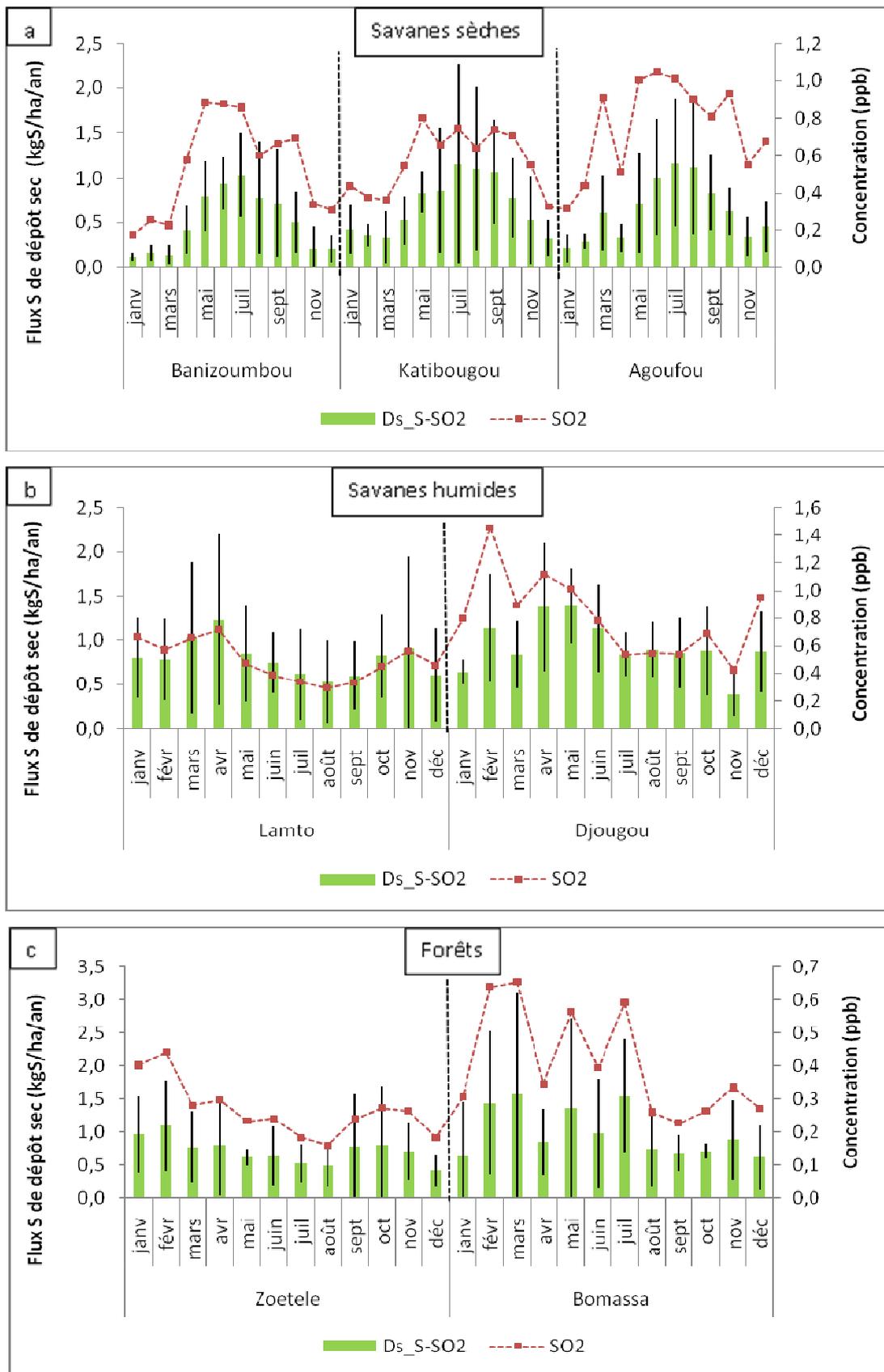


Figure 4.12 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec de soufre (2002-2007) par SO₂ sur le transect savane sèche (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations SO₂.

Comme dans le cas des autres gaz, le dépôt sec de SO₂ est important pendant la saison humide en savanes sèches et est de même ordre de grandeur entre les deux saisons en savanes humides et en forêts.

En savanes sèches, les moyennes saisonnières des flux de dépôt sec de SO₂ sont de 0,25±0,15 et 0,85±0,13 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Banizoumbou, 0,47±0,16 et 1,00±0,15 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Katibougou, et 0,45±0,18 et 1,03±0,15 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Agoufou, respectivement en saison sèche et en saison humide. Nous remarquons qu'en saison humide, les flux moyens saisonniers sont plus de 3 fois plus élevés à Banizoumbou et environ 2 fois (plus élevés) à Katibougou et Agoufou. En effet, les concentrations moyennes étaient environ 2 fois plus élevées à Banizoumbou alors qu'elles étaient seulement 1,3 fois plus élevées à Katibougou et Agoufou en saison humide. Les vitesses de dépôt sec de SO₂ calculées sont environ 1,5 fois plus élevées en saison humide pour les trois stations.

En savanes humides, les moyennes saisonnières des flux de dépôt sec de SO₂ sont de même ordre de grandeur entre les deux saisons et les deux sites avec des valeurs de 0,82±0,16 et 0,77±0,24 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Lamto et 0,77±0,24 et 1,05±0,25 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Djougou, respectivement en saison sèche et en saison humide.

De même dans **les écosystèmes forestiers**, les flux moyens saisonniers de dépôt sec de SO₂ sont de même ordre de grandeur avec des valeurs de 0,83±0,36 et 0,68±0,12 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Zoétéélé et 0,90±0,47 et 1,04±0,36 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Bomassa, respectivement en saison sèche et en saison humide.

Les concentrations moyennes saisonnières de SO₂ mesurées sont comparables entre les deux saisons pour les sites des savanes humides et forêts. A l'exception de Djougou où la vitesse de dépôt sec est environ 1,7 fois plus élevée en saison humide, les vitesses de dépôt sec simulées sont de même ordre de grandeur entre les deux saisons pour les sites forestiers et Lamto.

Les moyennes annuelles des flux de dépôt sec de SO₂ sont, en savanes sèches de 0,5±0,2 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Banizoumbou, 0,7±0,3 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Katibougou et 0,7±0,3 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Agoufou, en savanes humides de 0,8±0,4 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Lamto et 1,0±0,3 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Djougou, et en forêts de 0,8±0,4 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Zoétéélé et 1,0±0,5 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ à Bomassa. Nous remarquons que les flux moyens annuels de dépôt sec sont de même ordre de grandeur sur tout le transect des écosystèmes.

Dans une forêt de cèdre au Japon, une étude de flux de dépôt sec de SO₂ pendant un an (2001-2002) a été réalisée par simulation numérique. La vitesse de dépôt sec modélisée sur ce

site de $0,88 \text{ cm.s}^{-1}$ est du même ordre de grandeur que celle estimée dans les écosystèmes forestiers africains ($0,7 \text{ cm.s}^{-1}$). Le flux de dépôt sec du soufre estimé par la méthode inférentielle est de $3,6 \text{ kgS.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ dans la forêt japonaise (Takahashi et al., 2002), 3 fois supérieur aux flux estimés dans les forêts tropicales africaines (de l'ordre de $1 \text{ kgS.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) à cause des faibles concentrations de SO_2 qui y sont mesurées. Dans le nord de la Chine (banlieue Beijing), Sorimachi et al. (2003) ont mesuré des flux de dépôt sec de SO_2 par la méthode aérodynamique du gradient au-dessus d'une végétation d'herbes courtes. Le flux moyen de dépôt sec de SO_2 estimé est de $17,5 \pm 12 \text{ kgS.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ au début de l'été et de $50,3 \pm 45 \text{ kgS.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ au début de l'hiver. Ces très fortes valeurs des flux de dépôt de SO_2 par rapport à nos estimations sont dues aux fortes concentrations mesurées (17,2 ppb en été et 37 ppb en hiver) liées à l'influence des activités anthropiques. Les vitesses de dépôt sec moyennes de SO_2 correspondantes étaient de $0,2 \text{ cm.s}^{-1}$ en été et $0,4 \text{ cm.s}^{-1}$ en hiver.

D'une façon générale, les flux de dépôt sec de SO_2 estimés dans les écosystèmes africains sont faibles en raison de faibles concentrations mesurées (de l'ordre de 1-2 ppb). En effet, les sites reculés de mesure du réseau IDAF sont peu ou pas influencés par les activités anthropiques et par conséquent les sources de SO_2 y sont faibles. Ces sources dans ces écosystèmes non perturbés comprennent les émissions du sol, de la biosphère, et la combustion de biomasse (Van Breemen, 1982 ; Bates et al., 1992). Cependant, la teneur de la végétation en soufre est faible comparée aux éléments de carbone et d'azote (Lacaux et al., 1995).

Pour conclure sur le dépôt sec de SO_2 , nous comparons les flux estimés, dans le cadre du programme IDAF, aux flux simulés par les modèles globaux à l'échelle de la terre dans Dentener et al. (2006). En effet, Dentener et al. (2006) ont utilisé 23 modèles globaux de transport de chimie atmosphérique, dans une approche multi modèle, pour calculer le dépôt d'azote réactif (NO_y , NH_x) et de sulfate (SO_x) sur les surfaces de la terre et des océans. Dans le chapitre 5 (section 5.4), nous ferons la comparaison pour les flux de dépôt azotés. Dentener et al. (2006) ont présenté les simulations numériques du dépôt humide de SO_4^{2-} (sulfate du soufre) et du dépôt total de SO_x ($\text{SO}_2 + \text{SO}_4^{2-}$). La figure 4.13 présente un zoom sur l'Afrique de la simulation numérique moyenne du dépôt sec annuel de SO_2 (Dentener et al., 2006), comparée aux flux estimés dans le cadre du programme IDAF pour le continent africain.

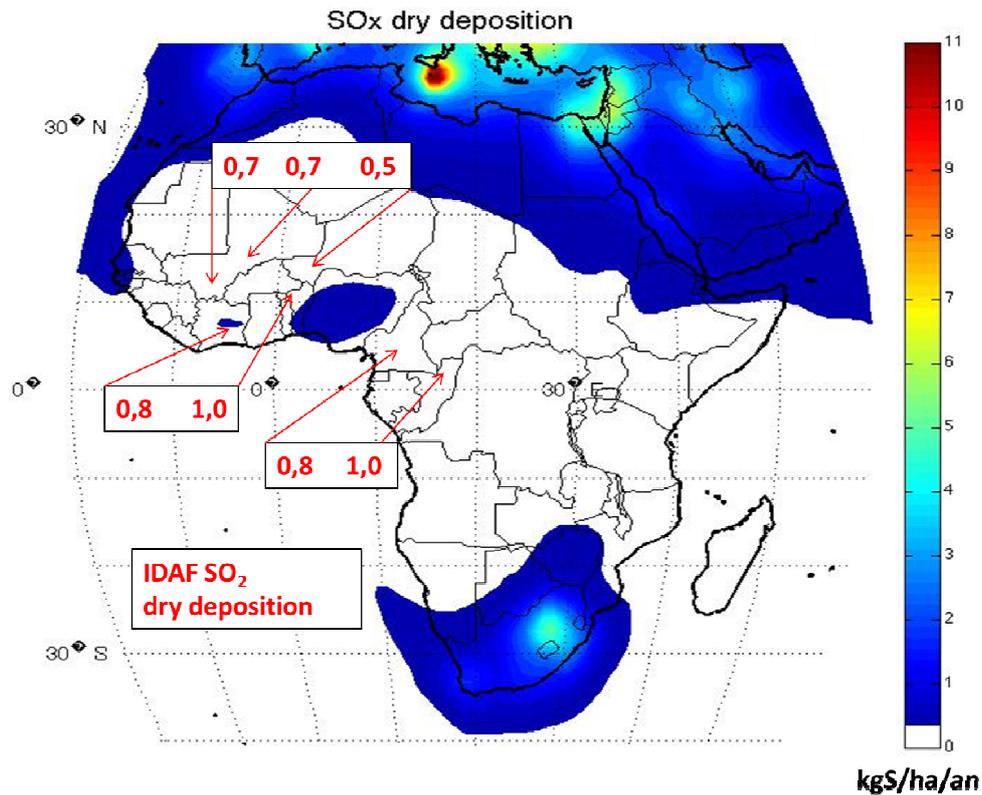


Figure 4.13 : Simulation du dépôt sec annuel de SO_x à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF pour le continent africain.

Nous remarquons (figure 4.13) que le flux de dépôt sec de SO_x (ou SO₂) simulé par l'approche multi modèle est négligeable (voire nul) pour tous les écosystèmes d'Afrique de l'Ouest et Centrale, à l'exception du Nigéria et une partie du centre de la Côte d'Ivoire où le flux est de l'ordre de 1-2 kgS.ha⁻¹.an⁻¹. Le flux observé au Nigéria est lié aux activités anthropiques en lien avec le pétrole.

Ce résultat est en accord avec les faibles flux de dépôt de SO₂ estimés dans le cadre du programme IDAF (0,5-1,0 kgS.ha⁻¹.an⁻¹) pour les écosystèmes d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Toutefois, à l'exception de la savane humide de Lamto (au centre de la Côte d'Ivoire), l'approche multi modèle global sous estime les flux observés dans les autres sites d'IDAF (0,5-0,7 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, 1,0 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ en savane humide de Djougou et 0,8-1,0 kgS.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts (figure 4.13). Ceci montre l'importance des réseaux de mesures dans les sites reculés (comme IDAF) pour valider les résultats des modèles.

Cette simulation numérique par l'approche multi modèle montre aussi l'influence des activités anthropiques en Afrique du Sud où le flux de dépôt sec de SO₂ est de l'ordre de 1-4 kgS.ha⁻¹.

¹.an⁻¹. Nous rappelons que, dans le cadre du réseau IDAF, la plus forte concentration moyenne annuelle de SO₂ a été mesurée à Amersfoort (2,8± 1,1 ppb), site de l’Afrique du Sud, influencé par les activités anthropiques du Highveld, zone très industrialisée (Martins et al., 2007).

4.3. Incertitudes dans l’estimation des flux de dépôt sec

Les incertitudes sur le calcul des flux de dépôt sec dépendent des incertitudes sur les concentrations des gaz et des incertitudes sur le calcul des vitesses de dépôt sec (V_d).

Les incertitudes liées à la mesure des concentrations gazeuses par la technique des capteurs passifs ont été quantifiées et données dans la section 2.2.2 du chapitre 2. On peut rappeler que la précision dans les mesures des concentrations des gaz IDAF peut être donnée par la covariance des duplicatas de l’ordre de 10 à 20% selon les gaz.

Concernant les vitesses de dépôt sec (V_d), la principale incertitude est liée à la vitesse du vent utilisée dans le forçage météorologique (de 10 à 20%).

Les autres incertitudes sont liées :

- au type de sol représenté indirectement dans le modèle par la longueur de rugosité et la résistance du sol ;
- au choix des paramètres physiologiques des plantes ;
- à l’utilisation des concentrations mensuelles associées à des V_d tri-horaires ensuite moyennées par mois. L’amplitude de ce type d’erreur pourrait être de l’ordre de 20% pour les espèces ayant de fortes variations diurnes (Matt and Mayers, 1993 ; Zhang et al., 2005).

Plusieurs études ont indiqué les limites de la méthode inférentielle pour les flux de NO₂ (Kramm et al., 1995, Vila-Guerau de Arellano and Duynkerke, 1992, Kristensen et al., 2010) en lien avec les réactions chimiques de NO₂ (production et consommation rapide de NO₂). Selon Vila-Guerau de Arellano and Duynkerke (1992), si la turbulence est paramétrée en termes d’un coefficient d’échange, les réactions chimiques peuvent induire une différence de 35% entre les coefficients d’échange réactif et inerte.

L’échange bidirectionnel de NH₃ entre l’atmosphère et la végétation, non pris en compte dans le modèle de Zhang et al. (2003b), pourrait constituer une autre incertitude supposée toutefois faible (Zhang et al., 2009).

Des incertitudes supplémentaires sont liées aux différentes paramétrisations de la vitesse de dépôt utilisées dans les modèles de dépôt sec. Les mécanismes d’échanges physiques, biologiques et chimiques impliqués dans le processus de dépôt sont assez

complexes à modéliser explicitement conduisant à des paramétrisations empiriques dans les modèles (Flechard et al. (2011), Schwede et al. (2011)). Wesely and Hicks (2000) ont indiqué une incertitude d'environ 30% sur l'ensemble des modèles de dépôt sec.

Les mesures directes des flux de dépôt sec sont techniquement difficiles à mettre en œuvre et coûteuses; ainsi les vitesses de dépôt couplées à des mesures de concentrations sont souvent utilisées. Peu de réseaux de suivi long terme mesurent les flux de dépôt sec. Cependant, le réseau canadien CAPMon ou américain NADP utilise la méthode inférentielle comme le réseau IDAF en Afrique.

Une meilleure estimation des flux de dépôt sec passe donc par une mesure directe des vitesses de dépôt. En ce sens, dans le cadre du réseau IDAF, nous avons récemment soumis un projet (EC2CO) de mesure des flux de dépôt sec par méthode micro-météorologique des espèces azotés et de l'ozone sur un écosystème sahélien. Ce projet permettra de valider les V_d estimées par modélisation.

4.4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons estimé les flux de dépôt sec des gaz azotés (NO_2 , NH_3 , HNO_3), du dioxyde de soufre (SO_2) et de l'ozone (O_3) dans les principaux écosystèmes africains, représentés par les sites IDAF. Les flux mensuels de dépôt sec ont été estimés par la méthode inférentielle, utilisant le produit des concentrations mensuelles mesurées par capteurs passifs sur le long terme avec des V_d calculées par modélisation (modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b)). Le calcul de V_d a été optimisé et validé pour les grands types d'écosystèmes africains. Dans chaque écosystème, les variations mensuelles, saisonnières et annuelles des flux de dépôt sec des gaz ont été analysées.

Sur le transect savanes sèches – savanes humides- forêts, les flux moyens de dépôt sec (des gaz azotés) varient de $0,4 \pm 0,0$ à $0,8 \pm 0,2$ $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ pour NO_2 , de $0,7 \pm 0,1$ à $1,0 \pm 0,3$ $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ pour HNO_3 et de $2,3 \pm 0,8$ à $6,7 \pm 2,3$ $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ pour NH_3 sur la période d'étude 1998-2007. Le dépôt sec annuel total d'azote par les trois gaz azotés ($\text{N-NO}_2 + \text{N-HNO}_3 + \text{N-NH}_3$) est beaucoup plus important en forêt ($8,0-8,5$ $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) et il est de même ordre de grandeur en savanes humides ($3,4-4,6$ $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) et en savanes sèches ($4-5,3$ $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$). L'azote se dépose majoritairement sous forme de NH_3 sur le transect d'écosystème et représente 67-80% du dépôt total d'azote.

Le flux moyen annuel de dépôt sec de SO_2 présente une faible variabilité sur le transect des écosystèmes et varie de $0,5 \pm 0,2$ à $1,0 \pm 0,5$ $\text{kgS} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ sur la période d'étude.

Pour l'ozone (O_3), la moyenne annuelle des flux de dépôt sec sur la période d'étude varie de $11,3 \pm 4,7$ à $17,5 \pm 3,0$ $kg \cdot ha^{-1} \cdot an^{-1}$ en savanes sèches, de $17,5 \pm 3,0$ à $19,2 \pm 2,9$ $kg \cdot ha^{-1} \cdot an^{-1}$ en savanes humides, et de $8,2 \pm 0,6$ à $10,2 \pm 2,1$ $kg \cdot ha^{-1} \cdot an^{-1}$ en forêts. Les faibles valeurs des flux de dépôt sec d' O_3 en forêts sont corrélées aux faibles valeurs des concentrations inférieures d'un facteur 2-3, comparées à celles mesurées dans les autres écosystèmes.

Cette étude a permis d'estimer la gamme moyenne des flux de dépôt sec des gaz représentative des principaux écosystèmes tropicaux d'Afrique de l'Ouest et Centrale, l'un des principaux objectifs scientifiques du programme IDAF. Ces résultats obtenus à partir des mesures à long terme des concentrations de gaz et leurs vitesses de dépôt modélisées sont originaux (ou inédits) pour les écosystèmes tropicaux.

Chapitre 5 :

Bilan de l'azote atmosphérique à l'échelle des écosystèmes africains

Sommaire

5.1. Introduction	157
5.2. Bilan des dépôts atmosphériques d'azote à l'échelle des écosystèmes africains.....	159
5.2.1. Le dépôt humide d'azote	159
5.2.2. Le dépôt sec d'azote	167
5.2.3. Bilan du dépôt atmosphérique total d'azote à l'échelle des écosystèmes africains .	169
5.3. Bilan émission-dépôt des principales espèces azotées à l'échelle des écosystèmes africains	174
5.3.1. Emission des composés azotés gazeux.....	174
5.3.2. Bilan émission-dépôt des composés azotés oxydés	176
5.3.3. Bilan émission-dépôt des composés azotés réduits.....	180
5.3.4. Bilan annuel émission-dépôt des composés azotés	183
5.4. Comparaison des flux de dépôt d'azote : mesures IDAF, modèles globaux	185
5.4.1. Mesures IDAF et multi modèle global de Dentener et al. (2006).....	185
5.4.2. Dépôt total d'azote dans les écosystèmes africains et charges critiques d'eutrophisation.....	192
5.5. Conclusion.....	194

5.1. Introduction

L'azote (N) est un élément essentiel dans l'atmosphère terrestre, la biosphère et l'hydrosphère (Galloway et al., 2003). Le cycle de l'azote dans les écosystèmes dérive initialement de trois principales sources : la fixation biologique de N, la minéralisation et les dépôts atmosphériques. L'azote N, présent majoritairement sous la forme N_2 , est donc converti en N réactif (N_r), qui comprend des formes inorganiques oxydées (par exemple, NO_x , HNO_3 , NO_3^-), des formes inorganiques réduites (NH_3 et NH_4^+), et des formes organiques (acides aminés et l'urée), avant son utilisation par des microbes ou des plantes. L'accroissement de la formation de l'azote réactif et sa redistribution globale par l'atmosphère dans l'environnement, peut avoir des impacts positifs comme une fertilisation et une amélioration de l'approvisionnement alimentaire, mais aussi négatifs sur la santé humaine et les écosystèmes.

La compréhension actuelle du cycle de l'azote et de son altération par les activités humaines, est illustrée par le schéma conceptuel de la cascade de l'azote proposé par Galloway et al. (2003) (Figure 5.1).

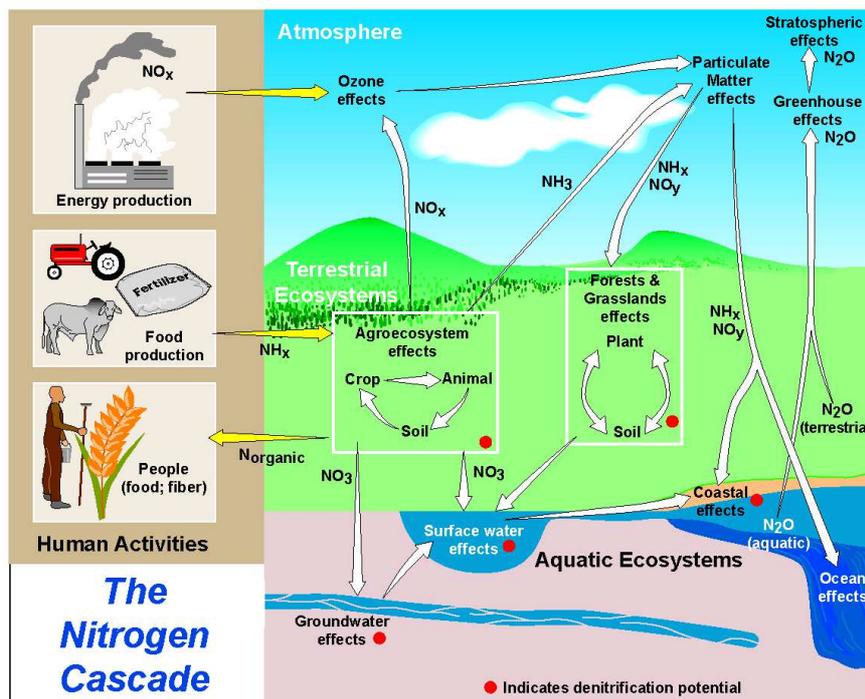


Figure 5.1: La cascade de l'azote (Galloway et al., 2003).

La cascade de l'azote, au sens de Galloway et al. (2003) décrit quantitativement et qualitativement le phénomène de circulation de l'azote dans la biosphère, l'hydrosphère et

l'atmosphère, et son accumulation dans plusieurs de leurs compartiments, mettant en exergue d'une part les risques environnementaux et de santé liés à ces accumulations, et d'autre part la partie liée aux activités humaines dans les flux observés. Après dépôt, l'azote peut induire une augmentation de l'acidité des sols, une diminution de la biodiversité, une pollution des nappes phréatiques et ainsi une eutrophisation des milieux aquatiques.

Le cycle de l'azote joue donc un rôle fondamental dans l'étude des échanges biosphère-atmosphère (Galloway et al. (2003, 2008) ; Holland et al., 1997 ; Dentener, et al., 2006 ; Matson et al., 1999 ; Phoenix et al., 2006,...). L'importance de l'étude des dépôts atmosphériques est liée à « la notion de Charge Critique », une estimation quantitative de l'exposition à un ou plusieurs polluants en dessous de laquelle aucun effet néfaste sur les éléments sensibles spécifiés de l'environnement ne se produit, dans l'état actuel des connaissances (Nilsson and Grennfelt, 1988) ; l'excédent défini comme la différence positive éventuelle entre le dépôt effectif et la Charge Critique, fournit une bonne estimation de la vulnérabilité d'une certaine zone (Hirst and Storvik 2003 ; Morselli et al., 2003a,b ; Skeffington et al., 2007, Bouwman et al., 2002a, Bobbink et al., 2010).

Le principal objectif de ce chapitre est de faire un bilan des dépôts atmosphériques (secs et humides) d'azote à l'échelle des écosystèmes du réseau IDAF. Ce bilan prend en compte les 3 types de mesures réalisées par le réseau qui sont : la composition chimique des pluies et des aérosols et les concentrations des gaz.

Mon travail de thèse m'a permis de contribuer à une première étude de bilan du cycle de l'azote incluant les émissions et les dépôts atmosphériques à l'échelle de la région sahélienne avec une étude couplée mesures IDAF / modélisation (Delon et al., 2010).

Dans ce chapitre, **le deuxième objectif** sera d'étendre ce bilan émission-dépôt des principales espèces azotées à l'échelle de l'ensemble des écosystèmes africains (savanes sèches, savanes humides et forêts).

Le troisième objectif sera de comparer les flux de dépôt d'azote, estimés dans le cadre du programme IDAF, d'une part aux flux simulés par les modèles globaux, et d'autre part aux valeurs de charges critiques d'eutrophisation existantes dans la littérature afin d'essayer d'appréhender l'impact du dépôt d'azote sur les écosystèmes tropicaux d'Afrique de l'Ouest et Centrale.

5.2. Bilan des dépôts atmosphériques d'azote à l'échelle des écosystèmes africains

Le dépôt total d'azote a été estimé à partir du dépôt humide sous forme d'ammonium (NH_4^+) et de nitrate (NO_3^-), du dépôt sec des gaz (NO_2 , HNO_3 , NH_3 , (chapitre 4)) et du dépôt sec des particules (pNH_4^+ , pNO_3^-).

5.2.1. Le dépôt humide d'azote

Le dépôt humide concerne le lessivage des espèces chimiques en phase gazeuse ou particulaire dans les hydrométéores (pluie, neige ou grêle) selon deux phénomènes fondamentaux : la capture par les gouttes de pluie de polluant gazeux ou particulaires dans le nuage (« rainout ») et la capture lors de la précipitation sous le nuage (« washout »).

Ces dernières années, la compilation des données validées de chimie des précipitations IDAF a permis de réaliser plusieurs synthèses, écosystème par écosystème, avec pour objectifs communs :

- de caractériser et de suivre sur le long terme la composition chimique des précipitations et quantifier les flux du dépôt humide associé ;

- d'étudier et de mettre en évidence les processus qui régulent le contenu chimique des pluies et des dépôts humides par l'analyse de leurs relations avec les principales sources de gaz et de particules atmosphériques émis par les écosystèmes ;

- d'analyser les variations temporelles, saisonnières et interannuelles de la chimie des précipitations et des dépôts associés.

Ainsi on peut citer les travaux suivants : Galy et Modi, 1998, Galy-Lacaux et al., 2009, Laouali et al., 2010 en savanes sèches du Niger et du Mali, Yoboué et al., 2005, Akpo et al., 2010 en savanes humides en Côte d'Ivoire et au Bénin , et Sigha et al., 2003, Lacaux et al., 1992 en forêt au Cameroun et au Congo.

Afin de présenter les principaux résultats concernant le dépôt humide de l'azote, nous présentons succinctement les conclusions publiées dans ces travaux de synthèse concernant le contenu chimique des pluies en ions NH_4^+ et NO_3^- à l'échelle des écosystèmes africains.

5.2.1.1. Composition chimique des pluies sur le transect : les ions NH_4^+ et NO_3^-

Les mesures de la composition chimique des précipitations ont permis d'établir les concentrations moyennes pondérées annuelles (VWM) des ions majeurs (SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , H^+ (pH), NH_4^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , et acides organiques) et leur dépôt humide dans les écosystèmes de savane sèche, savane humide, et forêt (Galy-Lacaux et al., 2009, Yoboué et al., 2005, Sigha et al., 2003). Ces études couvrent différentes périodes de mesure : par exemple 1996-2003 pour le site Zoétéélé en forêt, 1995-2002 pour le site Lamto de savane humide et 1994-2005 pour le site Banizoumbou de savane sèche. Dans notre étude, afin de faire un bilan de dépôt (sec et humide) d'azote sur le transect des écosystèmes, nous avons pris en considération les concentrations moyennes pondérées mensuelles et annuelles des ions NH_4^+ et NO_3^- et nous avons calculé le dépôt humide sur la période d'étude (1998-2007).

Sur la figure 5.2, nous présentons l'évolution des concentrations mensuelles moyennes des ions ammonium et nitrate sur la période d'étude et sur le transect savane sèche-savane humide-forêt. Sur cette figure la pluviométrie moyenne mensuelle mesurée sur chaque site IDAF est représentée. Pour l'écosystème forêt, seul le site Zoétéélé est considéré.

Le début (et la fin) de la saison des pluies permet le lessivage d'une atmosphère plus chargée en gaz et particules conduisant à de fortes concentrations des ions NH_4^+ et NO_3^- . Puis, le lessivage fréquent de l'atmosphère en pleine saison des pluies explique la diminution des concentrations moyennes pondérées par volume d'eau des ions en saison humide (figure 5.2).

Les concentrations moyennes pondérées annuelles des ions NH_4^+ et NO_3^- des sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale sur la période d'étude 1998-2007 sont présentées dans le tableau 5.1.

Tableau 5.1 : Concentrations moyennes pondérées annuelles des ions NH_4^+ et NO_3^- des sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale sur la période d'étude 1998-2007.

Concentration ($\mu\text{eq.L}^{-1}$)		NH_4^+	NO_3^-
Savanes sèches	Agoufou*	23,9 \pm 3,0	13,6 \pm 2,1
	Banizoumbou	17,8 \pm 2,4	11,2 \pm 2,6
	Katibougou	19,0 \pm 5,6	10,2 \pm 3,1
Savanes humides	Djougou*	12,8 \pm 3,7	7,5 \pm 0,9
	Lamto	20,7 \pm 5,0	8,8 \pm 2,3
Forêt	Zoétéélé	11,2 \pm 1,8	7,9 \pm 1,4

* La période d'étude du site Agoufou est 2004-2007 et du site Djougou 2005-2008

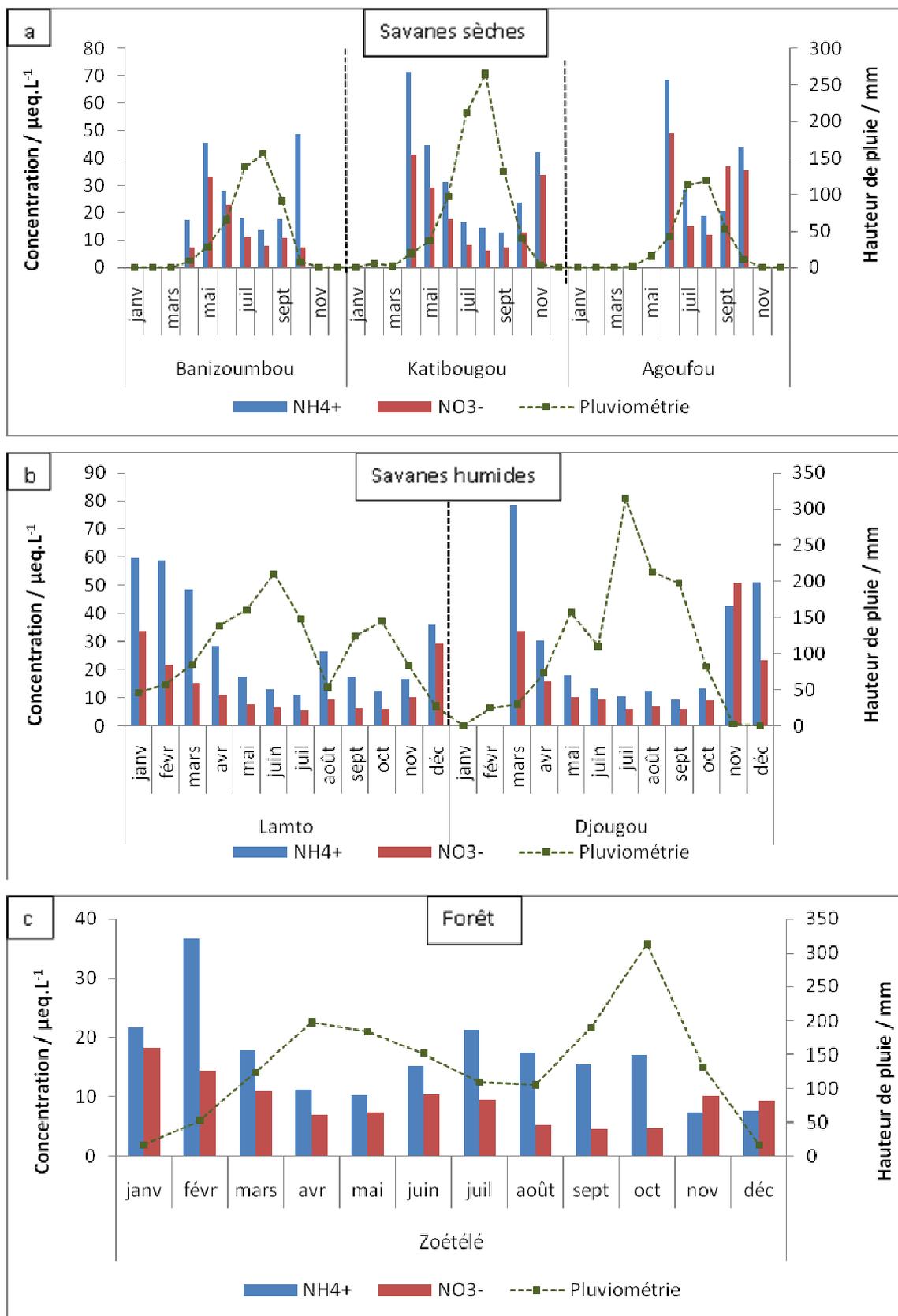


Figure 5.2. Evolution mensuelle des concentrations moyennes pondérées de NH_4^+ et NO_3^- sur le transect savane sèche (a), savane humide (b), forêt (c) sur la période 1998-2007.

Ammonium (NH_4^+). L'ammonium est l'ion azoté le plus abondant dans les pluies échantillonnées de tous les sites IDAF. Le contenu en ammonium dans les précipitations résulte de la capture de l'ammoniac gazeux et des particules contenant de l'ammonium par l'eau nuageuse et précipitante. Seinfeld (1986) a indiqué que généralement dans l'atmosphère, l'ammoniac (particulaire) se trouve sous la forme de sulfate d'ammonium ($(NH_4)_2SO_4$) mais il est possible de le trouver sous la forme de nitrate d'ammonium (NH_4NO_3) (Parmar et al., 2000). Les principales sources d'ammoniac gazeux proviennent de la décomposition de l'urée dans les excréments d'animaux et les sols fertilisés ou naturels (Schlesinger and Hartley, 1992), les feux de savanes et les combustions domestiques (Delmas et al., 1991). Sur le transect des écosystèmes, les concentrations moyennes annuelles de NH_4^+ dans les précipitations présentent un gradient négatif des savanes sèches et humides ($13-24 \mu eq.L^{-1}$) à la forêt ($11 \mu eq.L^{-1}$, à Zoétéélé) (tableau 5.1). Ces fortes concentrations dans les régions semi-arides d'Afrique de l'Ouest ($18-24 \mu eq.L^{-1}$) sont reliées aux persistantes sources d'ammoniac animales (Galy and Modi, 1998, Delon et al., 2010). Dans la savane humide de Lamto, les concentrations annuelles de NH_4^+ atteignent $21 \mu eq.L^{-1}$, et sont de même ordre de grandeur qu'en savanes sèches. Ces fortes concentrations à Lamto sont dues à la combinaison de la source animale et des émissions des feux de savanes en saison sèche (notamment de décembre à Mars) (figure 5.2).

Nitrate (NO_3^-). Les concentrations de nitrate dans les précipitations résultent des processus hétérogènes et homogènes d'inclusion dans l'eau nuageuse de composés gazeux et particulaires azotés. Le monoxyde d'azote (NO) est le composé majoritairement émis par les sols de savanes en saison humide (Serça et al., 1998, Otter et al., 1999), et une grande partie de ce NO est rapidement oxydé en HNO_3 et nitrates organiques. HNO_3 est un composé très soluble dans l'eau et donc facilement lessivable par les précipitations. Sur le transect des écosystèmes, les concentrations moyennes pondérées annuelles de nitrate dans les pluies sont légèrement plus élevées en savanes sèches ($10-14 \mu eq.L^{-1}$) et de même ordre de grandeur en savanes humides ($7,5-9 \mu eq.L^{-1}$) et en forêt ($8 \mu eq.L^{-1}$)(tableau 5.1).

Ces résultats de NH_4^+ et NO_3^- obtenus sur notre période d'étude (1998-2007) sont comparables aux caractérisations publiées dans les synthèses des différents écosystèmes (Galy-Lacaux et al., 2009 ; Yoboué et al., 2005 ; Sigha et al., 2003 ; Laouali et al., 2010 ; Akpo et al., 2010, ...).

Sur le transect d'écosystèmes, les concentrations d'ammonium et de nitrate dans les pluies d'Afrique de l'Ouest et Centrale sont plus élevées en savanes sèches (surtout à Agoufou) et plus faibles en forêt. La savane humide de Lamto présente des concentrations annuelles de même ordre de grandeur que les savanes sèches. Pour l'ion nitrate, l'écart des concentrations entre les trois écosystèmes est faible. La variabilité interannuelle des concentrations moyennes pondérées sur la période 1998-2007 est comprise entre $\pm 13\%$ et $\pm 30\%$ et ne présente pas de tendance significative. Cette variabilité est principalement due aux variations naturelles d'amplitude des sources et à la distribution spatio-temporelle de la pluviométrie (Galy-Lacaux et al., 2009).

5.2.1.2. Flux de dépôt humide des ions NH_4^+ et NO_3^-

Le dépôt humide d'azote a été calculé à partir des concentrations moyennes d'ammonium (NH_4^+) et de nitrate (NO_3^-) dans les pluies, et de la pluviométrie moyenne sur la même période de mesure. La figure 5.3 présente l'évolution mensuelle moyenne du flux de dépôt humide total d'azote sous forme d'ions NH_4^+ et NO_3^- pour les sites IDAF et sur le transect savane sèche-savane humide-forêt. Les flux moyens de dépôt humide annuel sont présentés dans le tableau 5.2.

Sur tous les sites, le dépôt d'azote sous forme ammonium (forme réduite) est plus important que sous forme nitrate (oxydée). En savanes sèches, le dépôt humide est maximal en juin-juillet, au cœur de la saison humide, période où la pluviométrie est la plus grande. Dans la savane humide de Lamto, le dépôt humide d'azote est aussi important au début de la saison sèche (janvier-mars). En effet, les concentrations des ions ammoniums et nitrates sont très élevées en lien avec l'intensité de la source des feux de savanes et la pluviométrie mensuelle élevée à cette période (50 à 100 mm). Pour le site forestier de Zoétélé, le dépôt humide d'azote est faible en saison sèche, notamment pendant les mois de décembre et janvier. L'évolution mensuelle des flux de dépôt humide d'azote est très influencée par la pluviométrie mensuelle pour chaque écosystème (figure 5.2, 5.3).

Nous notons que le gradient de la pluviométrie (moyenne annuelle) sur le transect des écosystèmes varie de 348 mm en savane semi-aride du Mali (Agoufou) à 1479 mm en forêt du Cameroun (Zoétélé) (Tableau 5.2).

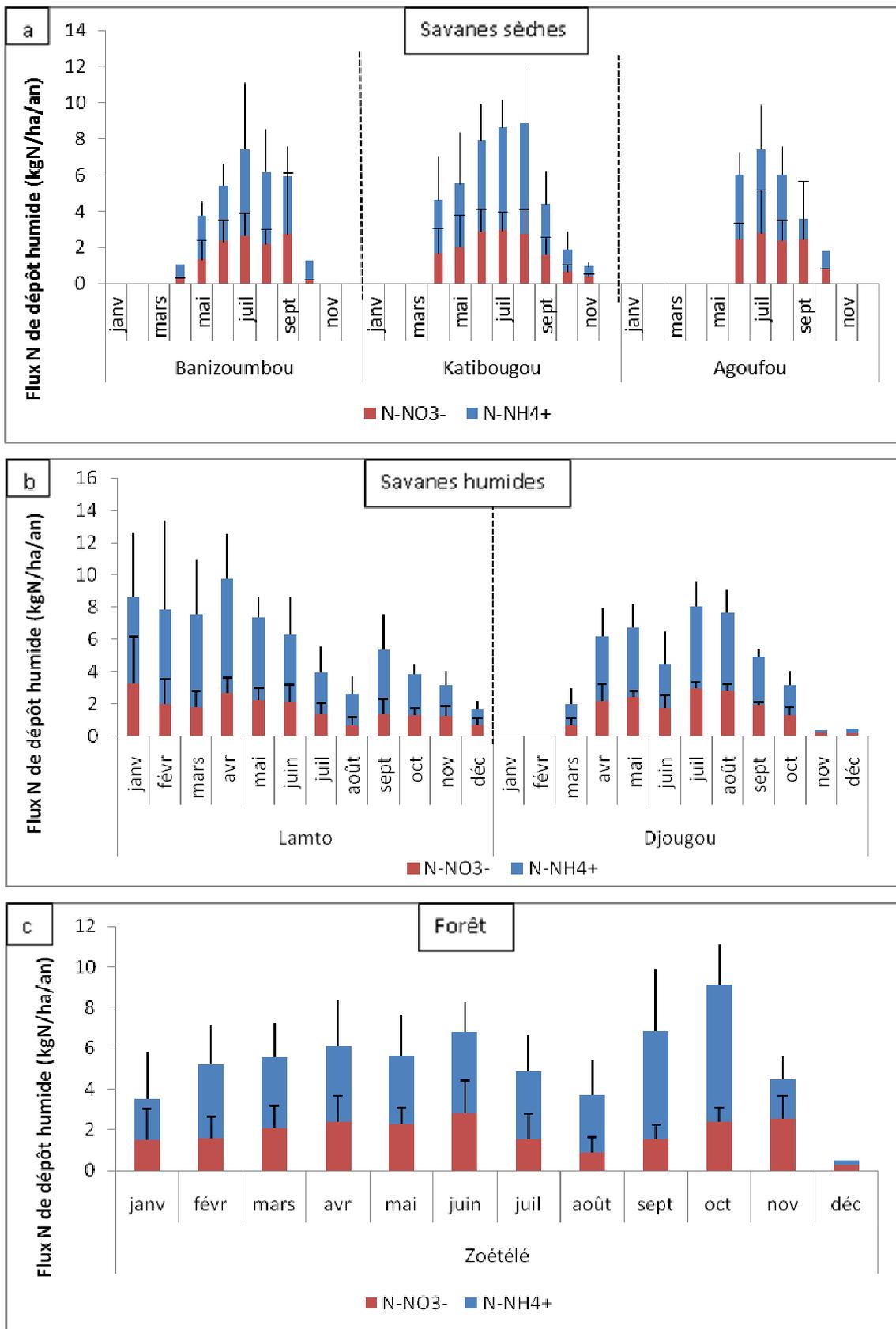


Figure 5.3 : Evolution mensuelle moyenne des flux de dépôt humide total d'azote par les ions NH_4^+ et NO_3^- sur le transect savane sèche (a), savane humide (b), forêt (c). Les barres d'erreur verticales indiquent les écart-types calculés sur la période d'étude (1998-2007).

Tableau 5.2 : Flux moyen annuel de dépôt humide d'azote par les ions NH_4^+ et NO_3^- ($\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) dans les stations IDAF sur la période d'étude 1998-2007.

Flux de Dépôt humide ($\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$)				
Site (pluviométrie moyenne annuelle)		N-NH_4^+	N-NO_3^-	Depôt humide total N
Savanes sèches	Agoufou* (348 mm)	1,0 \pm 0,4	0,6 \pm 0,3	1,6
	Banizoumbou (486 mm)	1,4 \pm 0,5	0,8 \pm 0,2	2,2
	Katibougou (797 mm)	2,1 \pm 0,4	1,1 \pm 0,3	3,2
Savanes humides	Djougou *(1205 mm)	2,2 \pm 0,5	1,3 \pm 0,1	3,5
	Lamto (1269 mm)	3,6 \pm 0,6	1,6 \pm 0,3	5,2
Forêt	Zoétéélé (1479 mm)	2,8 \pm 1,8	1,8 \pm 0,3	4,6

*La période d'étude du site Agoufou est 2004-2007 et du site Djougou 2005-2008.

Le dépôt humide total d'azote représente la somme des formes oxydées et réduites (N-NO_3^- , N-NH_4^+). Sur le transect, le dépôt humide annuel total d'azote mesuré est de 1,6 à 3,2 $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ en savanes sèches, de 3,5 à 5,2 $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ en savanes humides, et de l'ordre de 4,6 $\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ en forêt. Ainsi, malgré un gradient de concentration négatif des savanes sèches vers les forêts, on note un flux de dépôt humide d'azote important en forêt.

La figure 5.4 (a, b) présente le dépôt humide moyen annuel d'azote et le pourcentage de contribution de chaque ion au dépôt humide total pour les stations IDAF.

Le dépôt humide d'azote dans les principaux écosystèmes africains (sites IDAF) est dominé par un dépôt sous forme réduite (N-NH_4^+) qui représente environ 62 à 65% du total en savanes sèches, 63 à 70% en savanes humides et 63% en forêt. La contribution du dépôt humide d'azote sous forme oxydée (N-NO_3^-) représente donc environ 30 à 38% du total sur l'ensemble des écosystèmes (figure 5.4b).

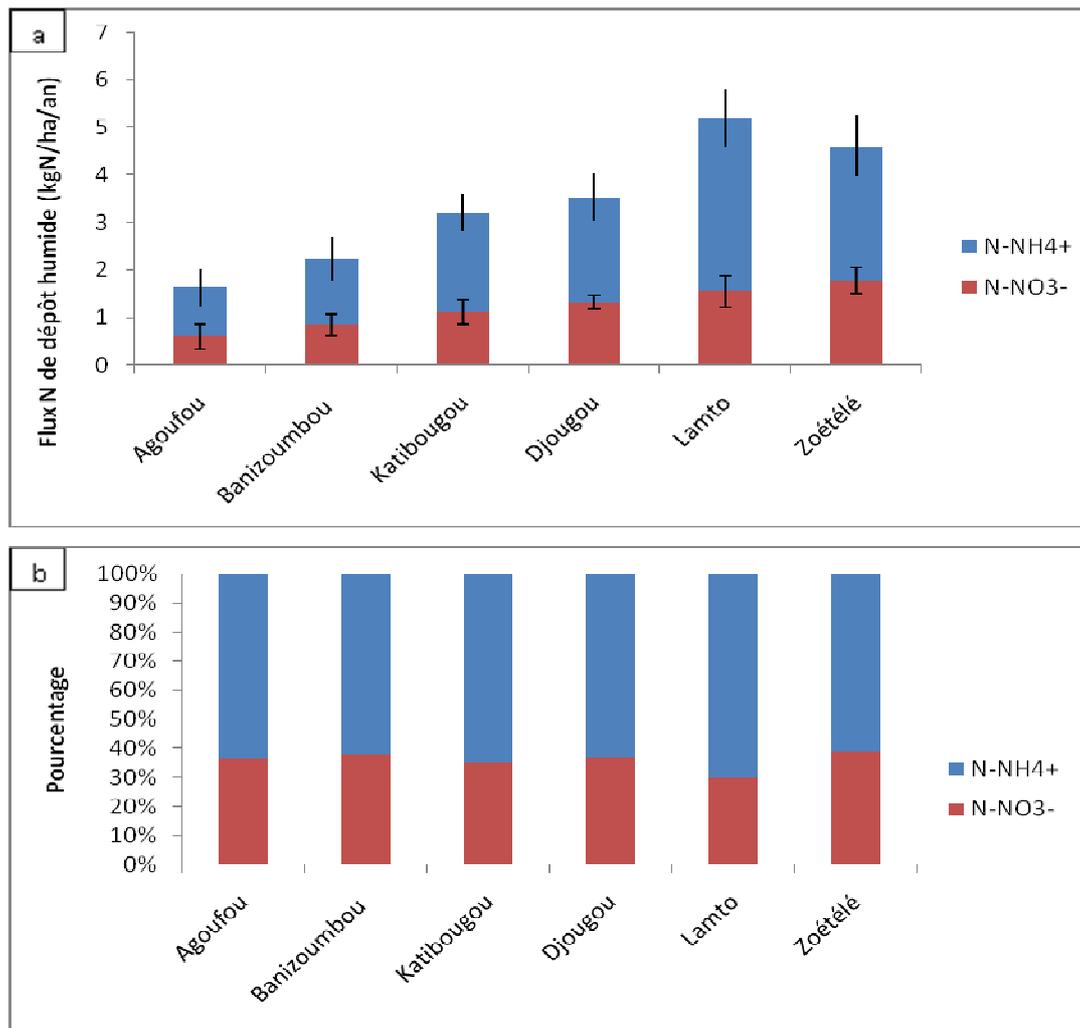


Figure 5.4 (a,b) : Flux moyens annuels de dépôt humide d'azote par NH_4^+ et NO_3^- (a) et leurs pourcentages de contribution au dépôt humide total d'azote (b) sur la période d'étude (1998-2007) dans les stations IDAF.

La variabilité interannuelle des flux de dépôt humide d'azote sous formes réduite et oxydée sur la période 1998-2007 est comprise entre $\pm 11\%$ et $\pm 44\%$ sur l'ensemble des sites. Les plus fortes variabilités sont observées en savanes sèches. L'incertitude globale du flux de dépôt humide a été évaluée à partir des incertitudes connues sur les mesures de concentrations d'ions dans les pluies et sur les mesures de hauteur de précipitation, et estimée à 10%.

5.2.2. Le dépôt sec d'azote

On distingue deux formes de dépôt sec : le dépôt sec sous forme gazeuse et le dépôt sec sous forme particulaire.

- **Dépôt sec d'azote sous forme gazeuse**

Le dépôt sec d'azote par voie gazeuse a été présenté dans le chapitre 4. Pour résumer, l'estimation des flux de dépôt sec d'azote est réalisée à partir des mesures mensuelles des concentrations gazeuses (NO_2 , NH_3 , HNO_3) associées à des vitesses de dépôt sec, calculées par la méthode inférentielle avec le modèle big-leaf de Zhang et al. (2003b).

Le bilan des flux de dépôt sec des gaz azotés est présenté dans le chapitre 4 à la section (4.2.1.4). Nous avons pu montrer que le dépôt sec total d'azote sous forme gazeuse est plus important en forêt ($\approx 8 \text{ kgN.ha.an}^{-1}$) et de même ordre de grandeur en savanes humides (3,4-4,6 kgN.ha.an^{-1}) et en savanes sèches (4-5,3 kgN.ha.an^{-1}). La contribution du dépôt sec d'azote sous forme gazeuse au dépôt total d'azote sera étudiée dans le bilan de dépôt atmosphérique total d'azote à l'échelle des écosystèmes africains (section 5.2.3).

- **Dépôt sec d'azote sous forme particulaire**

Le dépôt sec des particules azotées est calculé comme le produit de la concentration moyenne de la particule dans l'air par la vitesse de dépôt sec, tout comme pour le gaz (équation 4.2 du chapitre 4). Le processus de dépôt sec des particules diffère de celui des gaz. La solubilité et la réactivité sont les principaux facteurs affectant la résistance de surface pour les gaz, alors que pour les particules, le principal facteur ayant une influence sur la résistance est la taille de la particule. Selon leurs tailles et leurs masses volumiques, les particules vont être soumises à différents mécanismes de dépôt (Petroff et al., 2008, Sportisse, 2007) : la diffusion brownienne (pour les particules très fines), l'interception, l'impaction (ou impact par inertie), et la sédimentation (pour des grosses particules). Il existe de nombreux modèles de dépôt sec d'aérosols sur les couverts végétaux dans la littérature (Slinn, 1982 ; Wesely et al., 1985 ; Ruijgrok et al., 1995, 1997 ; Zhang et al., 2001). Les différents modèles décrivent les mêmes mécanismes (la diffusion brownienne, interception, etc.), mais utilisent des notions de vitesse macroscopique différentes. Certains ne s'attachent qu'à décrire la gamme dite grossière des aérosols (supérieure à $1 \mu\text{m}$, Aylor, 1982), d'autres s'appliquent à prédire le dépôt de toutes les tailles d'aérosols (Slinn, 1982 ; Wiman et Agren, 1985 ; Zhang et al., 2001). La plupart d'entre eux sont conçus pour être appliqués à un type de couvert particulier ; mais les modèles analytiques de Slinn (1982) et Zhang et al. (2001) peuvent s'appliquer à tous les couverts.

Une revue sur le dépôt sec des particules peut être trouvée dans Zhang and Vet (2006), Petroff et al. (2008), Fowler et al. (2009)...

A partir de ces revues, afin d'estimer le flux de dépôt sec des particules azotées, nous avons choisi des vitesses de dépôt sec (V_d) pour les écosystèmes de savanes dans la littérature. Les particules fines sont généralement déposées lentement, avec leur vitesse de dépôt d'une ampleur similaire à NO_2 ; cependant les particules grossières se déposent beaucoup plus rapidement (Zhang et al., 2009). Zhang et al. (2009) ont estimé des valeurs des V_d de pNO_3^- et pNH_4^+ comprises entre 0,1 et 0,2 cm.s^{-1} , du même ordre de celles de NO_2 (0,2 cm.s^{-1}). Pour les écosystèmes européens, les vitesses de dépôt sec des particules pNH_4^+ et pNO_3^- sont estimées de l'ordre de 0,2-0,3 cm.s^{-1} pour des végétations courtes (Flechard et al., 2011), et plus élevées dans le cas de surfaces plus rugueuses (forêt) (0,2-0,5 cm.s^{-1} ou 1-2,5 cm.s^{-1} selon les modèles).

Dans notre étude, en se basant sur les vitesses de dépôt sec des particules pNO_3^- et pNH_4^+ estimées dans Zhang et al. (2009) et Flechard et al. (2011) pour les différents écosystèmes, nous avons utilisé une gamme de valeurs de V_d pour les savanes (0,15-0,25 cm.s^{-1}) sans distinction de taille des particules.

Le dépôt sec d'azote sous forme particulaire est estimé à partir du produit entre les concentrations moyennes annuelles d'ammonium (pNH_4^+) et de nitrate (pNO_3^-) particulaires mesurées dans la partie soluble des aérosols, et des vitesses de dépôt sec. L'aérosol a été collecté, sans séparation en taille, à Banizoumbou (Niger) de 1996 à 2004, à Katibougou (Mali) de 1999 à 2003, à Lamto (Côte d'Ivoire) de 1998-2004.

Le tableau 5.3 présente les concentrations moyennes annuelles des particules pNH_4^+ et pNO_3^- mesurées ainsi que leurs flux de dépôt sec associés pour trois stations IDAF d'Afrique de l'Ouest.

Les concentrations moyennes annuelles de pNH_4^+ et pNO_3^- en savanes sèches (respectivement 0,5-0,6 $\mu\text{g.m}^{-3}$ et 0,2 $\mu\text{g.m}^{-3}$) sont de même ordre de grandeur qu'en savane humide de Lamto (respectivement 0,66 $\mu\text{g.m}^{-3}$ et 0,13 $\mu\text{g.m}^{-3}$).

La comparaison des concentrations des particules azotées avec les mesures de NH_3 en phase gazeuse dans les sites de savanes sèches (de l'ordre de 6,5 ppb, soit 4,5 $\mu\text{g.m}^{-3}$) et de savanes humides (de l'ordre de 4 ppb, soit 2,8 $\mu\text{g.m}^{-3}$) conduit à affirmer que le dépôt d'azote sous forme particulaire est négligeable, comparé à la forme gazeuse. Par conséquent, l'erreur commise sur le choix de la vitesse de dépôt sec des particules dans le calcul des flux de dépôt influencerait peu le bilan de dépôt d'azote.

Tableau 5.3 : Flux de dépôt sec moyen annuel d'azote par les particules $p\text{NH}_4^+$ et $p\text{NO}_3^-$ ($\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) dans trois stations IDAF, année de mesure des concentrations (96-04 pour 1996-2004).

Ecosystèmes	Sites IDAF	Concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)		Dépôt sec d'azote sous forme particulaire*		
		$p\text{NO}_3^-$	$p\text{NH}_4^+$	N- $p\text{NO}_3^-$	N- $p\text{NH}_4^+$	total N
savanes sèches	Banizoumbou (96-04)	0,45 \pm 0,03	0,20 \pm 0,02	0,05-0,08	0,07-0,12	0,12-0,20
	Katibougou (99-03)	0,63 \pm 0,18	0,15 \pm 0,06	0,07-0,11	0,05-0,09	0,12-0,20
savane humide	Lamto (98-04)	0,66 \pm 0,16	0,13 \pm 0,04	0,07-0,12	0,05-0,08	0,12-0,20

*Les gammes $V_d = 0.15-0.25 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les sites de savanes sont utilisées pour estimer la gamme des flux de dépôt sec des particules $p\text{NH}_4^+$ et $p\text{NO}_3^-$.

Le flux moyen annuel de dépôt sec total d'azote sous forme particulaire est estimé entre 0,12-0,20 $\text{kgN}\cdot\text{ha}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes (tableau 5.3). La gamme proposée pour cette estimation dépend de la gamme de vitesses de dépôt sec mentionnée plus haut. En forêt, le dépôt sec d'azote sous forme particulaire est considéré négligeable comme dans les autres écosystèmes. Notre estimation montre que le dépôt sec total d'azote sous forme particulaire est faible pour les écosystèmes africains, comparé au dépôt sec sous forme gazeuse qui varient de 3,4 à 8 $\text{kgN}\cdot\text{ha}\cdot\text{an}^{-1}$. Le dépôt sec sous forme particulaire ne représente que 3 à 4% du dépôt sec total d'azote sur l'ensemble des écosystèmes africains.

Pour le bilan annuel du dépôt total d'azote, nous utiliserons la moyenne de la gamme estimée des flux de dépôt sec sous forme particulaire (tableau 5.3).

5.2.3. Bilan du dépôt atmosphérique total d'azote à l'échelle des écosystèmes africains

Le bilan de dépôt sec et humide d'azote a été réalisé pour tous les sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Ce travail nous a permis de proposer une première estimation du dépôt total d'azote pour l'Afrique à l'échelle des sites pour les trois principaux écosystèmes.

Nous présentons sur la figure (5.5) l'évolution mensuelle du dépôt total (sec sous forme gazeuse et humide) d'azote sur le transect savane sèche-savane humide-forêt. Le dépôt sec mensuel des particules azotées n'est pas représenté.

En savanes sèches, l'azote se dépose en quantité plus importante en saison humide (10-18,5 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) qu'en saison sèche (1,5-9 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$). En savanes humides, les valeurs

mensuelles du dépôt d'azote varient de 5 à 15,5 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ à Lamto avec un dépôt plus important au début de la saison sèche (janvier-avril), et de 3 à 12 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ à Djougou où le dépôt en saison humide est prédominant. Dans l'écosystème forestier (Zoétélé), les moyennes mensuelles des flux de dépôt total d'azote sont comprises entre 7 et 17 kgN.ha⁻¹.an⁻¹, la plus faible valeur étant obtenue au début de la saison sèche (décembre).

Le tableau 5.4 présente le bilan annuel du dépôt d'azote pour les sites IDAF et la contribution en pourcentage de ses composantes. Le dépôt annuel d'azote de chaque espèce pour chaque site de mesure est représenté à la figure 5.6.

Les résultats montrent que le dépôt total d'azote estimé est de l'ordre de 6-9 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savane sèche, 7-10 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savane humide, et 13 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en forêt d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Nous observons un gradient (positif) du dépôt d'azote sur le transect de la savane sèche /savane humide /forêt. Le dépôt sec d'azote sous forme particulaire est négligeable (0,1-0,2 kgN.ha⁻¹.an⁻¹) et ne représente que 2 % du dépôt total d'azote (tableau 5.4).

En savanes sèches, la contribution relative du dépôt sec des gaz au dépôt total d'azote représente entre 61 et 71 % tandis qu'en savanes humides cette contribution est comprise entre 46 et 49%, et est de l'ordre de 63% en forêt. Ce bilan met clairement en évidence l'importance des processus de dépôt sec pour les espèces gazeuses azotées. Nous notons qu'en savanes humides, la contribution du dépôt humide est équivalente à celle du dépôt sec.

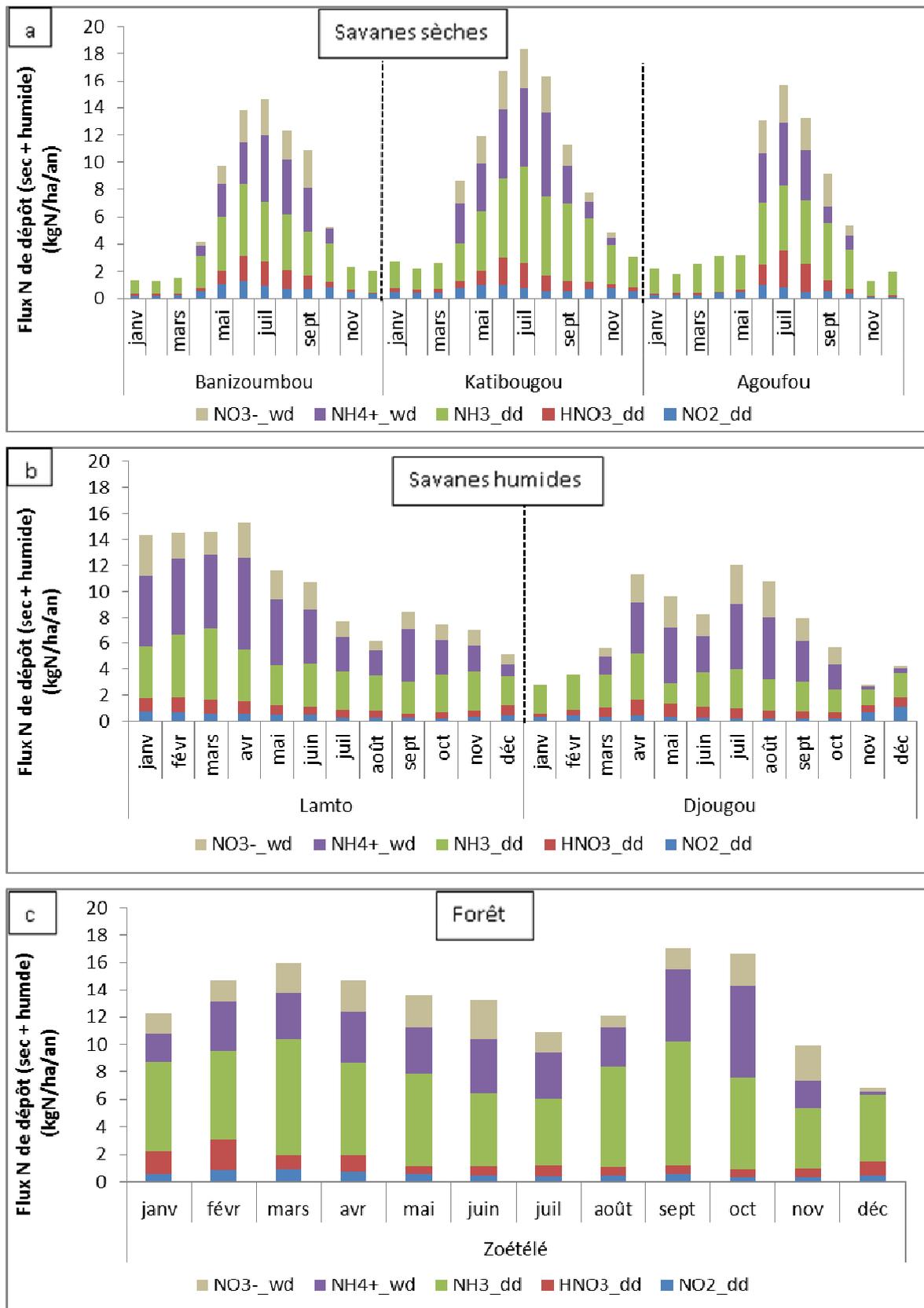


Figure 5.5 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt total d’azote (1998-2007) sur le transect savane sèche (a) – savane humide(b) – forêt (c). **dd** : dry deposition (dépôt sec) ; **wd** : wet depositions (dépôt humide).

Tableau 5.4 : Bilan de dépôt d'azote (en $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) incluant dépôt humide et dépôt sec sous forme gazeuse et particulaire (pourcentage de contribution de chaque type de dépôt au total) à l'échelle des écosystèmes africains.

Dépôt d'azote ($\text{KgN}/\text{ha}/\text{an}$)		Dépôt sec		Dépôt humide ($\text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$)	Dépôt total
		Gazeux ($\text{NO}_2 + \text{HNO}_3 + \text{NH}_3$)	particulaire ($\text{pNO}_3^- + \text{pNH}_4^+$)		
Savanes sèches	Agoufou	4,0 (71%)	*	1,6 (29%)	5,6
	Banizoumbou	4,0 (63%)	0,16 (2%)	2,2 (35%)	6,4
	Katibougou	5,3 (61%)	0,16 (2%)	3,2 (37%)	8,7
Savanes humides	Djougou	3,4 (49%)	*	3,5 (51%)	7,0
	Lamto	4,6 (46%)	0,16 (2%)	5,2 (52%)	9,9
Forêt	Zoétéélé	8,0 (63%)	*	4,6 (37%)	12,6
	Bomassa	8,5	*	*	

* : mesures d'aérosols ou de contenu chimique des pluies non disponibles ou non traitées.

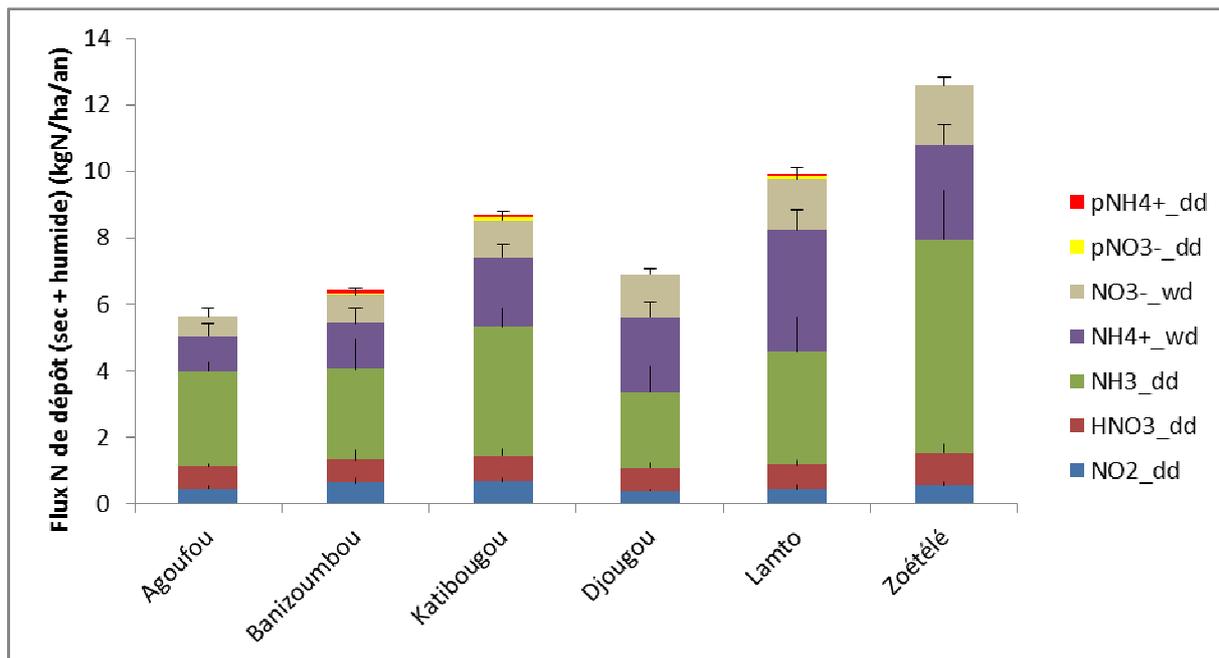


Figure 5.6 : Flux moyen annuel de dépôt total d'azote (sec + humide) dans les stations IDAF sur la période d'étude 1998-2007. **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide.

La contribution de chaque espèce azotée au dépôt total d'azote est représentée à la figure 5.7. Le dépôt sec d'azote par l'ammoniac gazeux (NH_3) prédomine dans le bilan de dépôt total d'azote en savanes sèches (42-51%) et en forêt (51%). En savanes humides, les contributions

du dépôt humide de NH_4^+ (32-37%) et du dépôt sec de NH_3 (33-34%) au dépôt total d'azote sont de même ordre de grandeur.

L'analyse des formes oxydées (NO_2 , HNO_3 , NO_3^- , pNO_3^-) et réduites (NH_3 , NH_4^+ , pNH_4^+) du bilan de dépôt total d'azote montre qu'il est dominé par un dépôt sous forme réduite qui représente environ 65 à 74 % du total pour tous les écosystèmes.

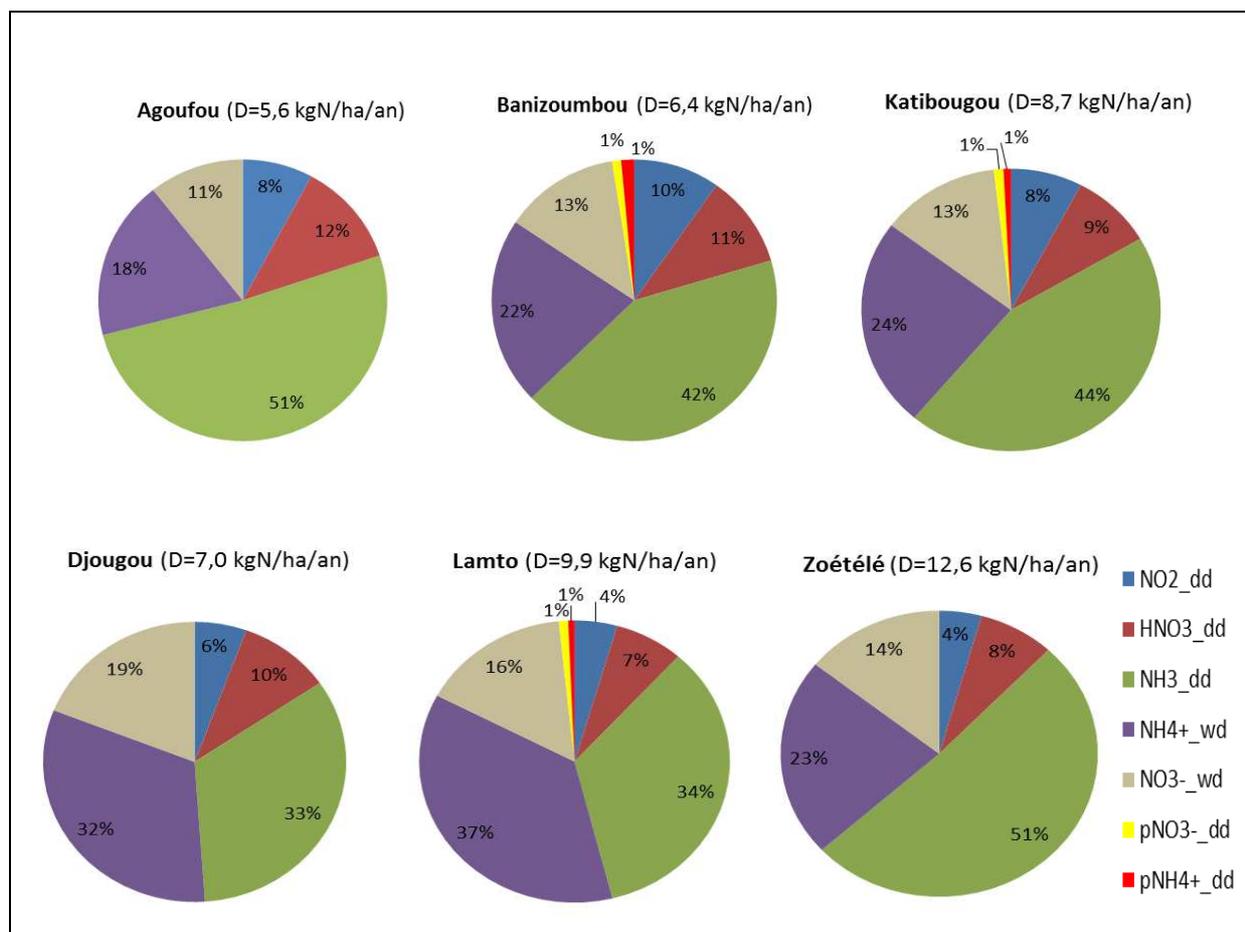


Figure 5.7 : Contribution de chaque espèce azotée du dépôt sec (NO_2 , HNO_3 , NH_3 , pNO_3^- , pNH_4^+) et du dépôt humide (NO_3^- , NH_4^+) aux flux du dépôt total d'azote au niveau des sites IDAF. **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide ; **D** : dépôt total d'azote.

Il est important de préciser que ce bilan ne prend en compte qu'une partie des composés azotés et n'inclut pas les espèces azotées organiques (par exemple, PAN). Ainsi ce bilan pourrait être sous estimé. Toutefois, les concentrations de PAN sont supposées négligeables dans les régions non polluées (autour de 100 ppt ; Seinfeld and Pandis, 1998), comparées aux concentrations de NO_2 (1-2,5 ppb) et HNO_3 (0,2-0,5 ppb) mesurées sur les sites reculés du réseau IDAF (Adon et al., 2010).

Nous estimons l'incertitude globale de ce bilan de dépôt d'azote à environ 30%, sachant que les estimations du dépôt humide sont relativement bien connues (à 10% près) et que les flux de dépôt sec ont une incertitude plus grande, liée à l'estimation des vitesses de dépôt sec.

L'analyse de la base de données IDAF, avec ses trois composantes (chimie des pluies, des aérosols et des gaz), a permis d'établir le premier bilan du dépôt d'azote à l'échelle des écosystèmes africains. Ce bilan d'azote inorganique est une composante importante du cycle global de l'azote réactif dans l'atmosphère.

5.3. Bilan émission-dépôt des principales espèces azotées à l'échelle des écosystèmes africains

Un bilan émission-dépôt des principales espèces azotées pour l'année 2006 en région sahélienne a été déjà réalisée grâce à une approche couplée modèle-mesures IDAF (Delon et al., 2010). Dans ce travail, nous avons étendu ce bilan à l'échelle des écosystèmes d'Afrique de l'Ouest et Centrale sur notre période d'étude (1998-2007).

5.3.1. Emission des composés azotés gazeux

Les flux d'émission de composés gazeux estimés pour ce bilan sont : les flux biogéniques de NO par les sols, les émissions de NO_x et de NH₃ par les feux domestiques et les combustions de biomasse ainsi que les flux de NH₃ par volatilisation des excréments d'animaux domestiques.

Je voudrais souligner ici que l'ensemble du travail sur les estimations des émissions a été réalisé par C. Delon au laboratoire d'Aérodologie avec qui j'ai collaboré étroitement afin d'initier les différents travaux sur le bilan émission dépôt d'azote à l'échelle des écosystèmes africains. Ma contribution dans ce contexte a porté en particulier sur l'estimation de dépôt sec validé sous forme gazeuse pour chacun des écosystèmes étudiés. Deux publications ont déjà été réalisées. La première est un bilan émission dépôt à l'échelle des écosystèmes sahéliens pour l'année 2006 (Delon, Galy-lacaux, Adon et al, 2010) et la seconde porte sur l'analyse pluriannuelle du bilan émission dépôt d'azote à l'échelle des savanes sèches et humides (Delon, Galy-lacaux, Adon et al, 2011).

Les flux d'émission de NO sont simulés avec le modèle ISBA (Noilhan and Mahfouf, 1996), auquel a été ajouté un module d'émission biogénique par les sols, élaboré à l'aide d'un réseau

de neurones artificiel (Delon et al, 2007, 2008, 2010). Ce module d'émission a été testé en zone aride pendant la saison des pluies à l'aide du modèle Méso-NH (Delon et al., 2008). L'humidité du sol a une influence primordiale dans les écosystèmes de savanes sèches, en raison de fortes émissions (pulses) lors des premières pluies de la saison. En savanes humides et en forêts, ce phénomène est réduit, en raison de l'humidité des sols plus élevée, même pendant la saison sèche. Les flux simulés de NO ont été calculés sur une maille de $3^{\circ} \times 3^{\circ}$ centrée sur chaque site de mesure. Le forçage météorologique développé dans le programme ALMIP a été utilisé (voir section 4.1.1 du chapitre 4). L'incertitude du flux biogénique de NO à partir du sol est proche de 20% en moyenne annuelle pour chaque site (Delon, Galy-lacaux, Adon et al., 2011).

Les taux de fertilisation fournis au modèle sont élaborés à partir du calcul de l'azote émis par fertilisation organique (excréments d'animaux) pour chaque pays. La fertilisation synthétique est considérée comme négligeable (Bouwman et al., 1997, Potter et al., 2010). Delon et al. (2010) ont développé une base de données de fertilisation organique pour 23 pays d'Afrique de l'Ouest et Centrale. On considère une quantité d'azote émise par un cheptel d'animaux constitué de vaches, de moutons et de chèvres. La densité de population animale, dans chaque sous-région pour chaque pays, est issue de la base de donnée GLIPHA (Global Livestock Production and Health Atlas) de la FAO (Food and Agriculture Organization) (2009, <http://kids.fao.org/glipha/>). L'inventaire du taux de fertilisation d'azote ainsi obtenu est une valeur d'entrée en azote de l'algorithme du réseau de neurones.

La quantité d'azote émise par les animaux en azote est estimée à $23 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Agoufou (Mali), $25 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Banizoumbou (Niger), $11 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Katibougou (Mali), $8 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Djougou (Benin), $8 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Lamto (Côte d'Ivoire) et $3 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ à Zoétélé (Cameroun). 30% de cet apport azoté est utilisé pour le calcul du flux de volatilisation de NH_3 , le reste est utilisé comme apport dans le module d'émissions biogéniques de NO par les sols (Delon et al., 2010, 2011). L'incertitude totale appliquée au flux de volatilisation est de l'ordre de 50%.

Les émissions de NO_x et de NH_3 par les combustions de biomasse ont été calculées à partir des données satellites des surfaces brûlées (L3JRC) (Lioussé et al., 2010), dérivées des données du capteur végétation SPOT-VGT et de la carte de végétation GLC (Global Land Cover). Les facteurs d'émissions des espèces gazeuses ont été choisis selon Andreae et Marlet (2001). Des flux mensuels moyens d'émissions ont ainsi été estimés sur une fenêtre de $5^{\circ} \times 5^{\circ}$

centrée sur chacun des sites d'étude. Selon Delon et al (2010), l'incertitude totale appliquée aux flux de combustion de biomasse (de NH₃ et NO_x) est 54%.

Les émissions de NO_x et de NH₃ par les feux domestiques, principalement liées aux combustions de « biofuels » pour cuisiner, ont été estimées constantes sur l'année. Des flux annuels d'émissions ont été estimés sur une fenêtre de 5°×5° pour chaque site à l'aide de la méthodologie développée par Junker et Lioussé (2008). L'incertitude totale appliquée aux feux domestiques est 60% et l'incertitude totale sur les flux d'émission est évaluée à 45% (Delon, Galy-lacaux, Adon et al 2011).

Les flux d'émission moyens annuels de chaque composé azoté estimé au niveau des sites IDAF sont résumés dans le tableau 5.5.

Tableau 5.5 : Flux d'émission moyens annuels des composés azotés (en kgN.ha⁻¹.an⁻¹) dans les stations IDAF sur la période 2002-2006.

Emission d'azote (kgN/ha/an)	Composés oxydés			Composés réduits		
	NObiogénique	NO _x BB*	NO _x BF*	NH ₃ volatilisation	NH ₃ BB*	NH ₃ BF*
Agoufou	1,1 ±0,2	0,0 ±0,0	0,1 ±0,0	7,2 ±3,6	0,0 ±0,0	0,3 ±0,2
Banizoumbou	1,6 ±0,2	0,5 ±0,1	0,1 ±0,1	7,7 ±3,8	0,3 ±0,1	0,1 ±0,0
Katibougou	1,5 ±0,2	0,5 ±0,2	0,1 ±0,0	3,4 ±1,7	0,3 ±0,1	0,2 ±0,1
Djougou	2,3 ±0,1	1,3 ±0,6	0,3 ±0,1	2,5 ±1,2	0,8 ±0,3	0,7 ±0,3
Lamto	2,0 ±0,0	1,4 ±0,7	0,2 ±0,1	2,3 ±1,2	1,0 ±0,2	0,8 ±0,3
Zoétéélé	1,8 ±0,0	1,2 ±0,3	0,1 ±0,1	1,0 ±0,5	0,6 ±0,2	0,3 ±0,1

* BB : biomass burning (combustion de biomasse), BF : biofuel (feux domestiques).

Dans les sections suivantes, les flux d'émission de composés azotés oxydés et réduits seront présentés séparément; puis ils seront comparés aux flux de dépôt d'azote oxydés et réduits dans le but de mieux comprendre la contribution de chaque source d'émission au dépôt.

5.3.2. Bilan émission-dépôt des composés azotés oxydés

Le flux d'émission d'azote sous forme oxydée est défini comme la somme des flux biogéniques de NO par les sols, des flux de NO_x par la combustion de biomasse et les feux domestiques. Il est comparé au flux de dépôt des composés oxydés, défini comme la somme des flux de dépôt sec sous forme NO₂ et HNO₃ en phase gazeuse et pNO₃⁻ en phase particulaire, et des flux de dépôt humide de NO₃⁻.

La figure 5.8 présente les résultats des flux d'émission moyens mensuels simulés (composés oxydés) sur la période 2002-2007, comparés aux flux mensuels de dépôt des composés azotés oxydés pour chaque site IDAF.

En savanes sèches, les flux de dépôt et d'émission augmentent simultanément au début de la saison humide ; le maximum est atteint en juin/juillet pour les flux de dépôt et en août pour les flux d'émission (biogénique de NO). Les flux d'émission de NO_x par combustion de biomasse présente un maximum en novembre/décembre à Banizoumbou et à Katibougou, et correspond à l'apparition des feux pendant la saison sèche. A Agoufou, aucune émission due aux combustions de biomasse n'est observée ; ceci est cohérent avec les mesures des concentrations de NO₂ qui n'ont pas montré de pic en saison sèche (peu de végétation à cette période).

La comparaison émission-dépôt des flux mensuels (figure 5.8a) confirme le dépôt total d'azote sous forme oxydée, en quantité plus importante en saison humide (4-6 kgN.ha⁻¹.an⁻¹) dans les sites de savanes sèches. Ceci est la conséquence de forte émission des flux biogénique de NO par les sols en cette saison. Les flux d'émission et de dépôt sont, tous les deux, très faibles en saison sèche.

En savanes humides, l'évolution mensuelle des flux d'émission biogénique (NO) simulés est comparable à celle des flux de dépôt d'azote sous forme oxydée, surtout en saison humide. Nous remarquons, à la figure 5.8b, que les émissions de NO_x dues aux combustions de biomasse sont très élevées en décembre pour les deux stations. Les mesures de concentrations de NO₂ par les capteurs passifs ont montré des valeurs très élevées en janvier/février à Lamto et en novembre/décembre à Djougou, dues aux feux de savanes. La forte amplitude des flux de NO_x en décembre à Lamto serait due à l'impact des émissions des combustions de biomasse à l'échelle régionale.

En forêt (Zoétélé), les flux mensuels d'émission biogénique de NO par les sols sont pratiquement constants sur toute l'année, la saison sèche étant peu marquée dans cet écosystème (figure 5.8c). De décembre à janvier (saison sèche), les émissions des composés d'azote oxydés sont dominées par les émissions des combustions de biomasse, comme en savanes humides. Les mesures des concentrations de NO₂ à Zoétélé (figure 3.1) ne montrent pas une très forte influence des combustions de biomasse en décembre. Ainsi, nous supposons que la forte valeur des flux simulés de NO_x en décembre serait aussi due à l'impact des émissions à l'échelle régionale. Les flux de dépôt d'azote sous forme oxydée ne présentent pas de tendance saisonnière tout comme les flux d'émissions biogéniques de NO par les sols. Les valeurs mensuelles des flux de dépôt d'azote sont supérieures à celle des flux d'émission en saison humide.

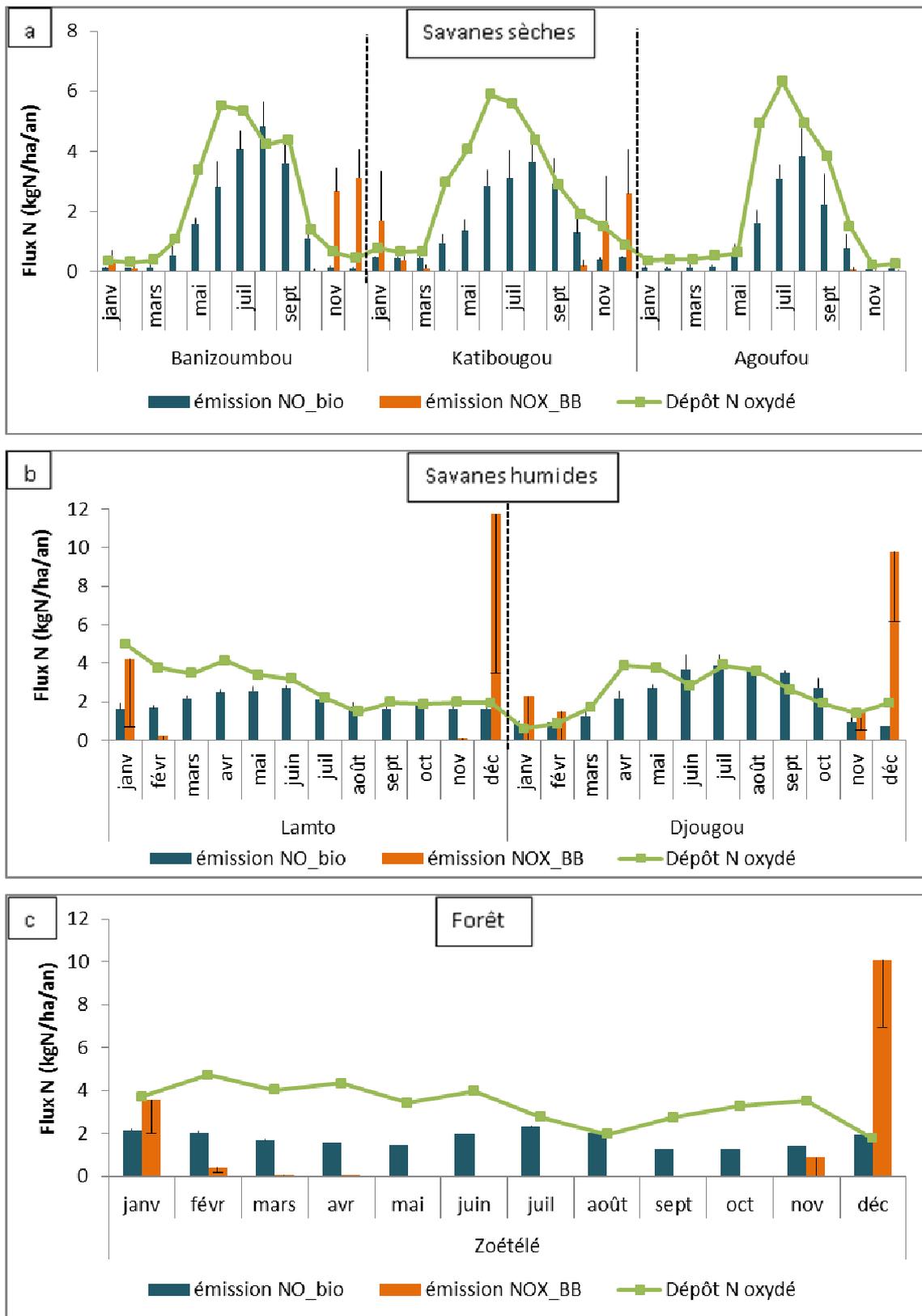


Figure 5.8 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens d'émission et de dépôt des composés d'azote sous forme oxydée sur le transect savane sèche (a) – savane humide (b)- forêt (c). **bio** : biogénique ; **BB** :biomass burning (combustion de biomasse). Les barres représentent les écart-types sur la période 2002-2007.

La comparaison de ces flux (figure 5.8), à l'échelle mensuelle, montre un bon accord entre l'ordre de grandeur des émissions simulées et des dépôts calculés, tout en soulignant les difficultés de l'analyse du bilan d'azote dans ces zones reculées où très peu de mesures sont disponibles. La modélisation des émissions présente une alternative à ce manque de mesure, mais de nombreuses questions restent préoccupantes, par exemple, la quantité d'azote contenue dans les sols, ou la quantité d'émissions après la première pluie dans les régions semi-arides. Toutefois, l'exploitation en commun des mesures IDAF et les résultats de la modélisation des émissions donne une opportunité unique dans l'analyse d'un premier bilan d'azote à l'échelle de l'Afrique.

A l'échelle annuelle, nous avons réalisé une première estimation de la contribution des émissions biogéniques, et par les combustions de biomasse et les feux domestiques au dépôt atmosphérique des composés d'azote sous forme oxydée. La figure 5.9 présente les moyennes annuelles des flux d'émission (a) et des flux de dépôt oxydés (b) pour les stations IDAF.

Les flux d'émission moyens annuels d'azote (sous forme oxydée) sont de l'ordre de 1-2 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes sèches, de 3,5-4 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes humides, et de 3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ et en forêt. Le dépôt moyen annuel d'azote sous forme oxydée varie de 1,7 à 2,8 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes (sèches et humides) et est de l'ordre de 3,3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en forêt. Pour les composés d'azote oxydés, les flux d'émission et de dépôt sont généralement de même ordre de grandeur dans les écosystèmes, excepté pour la savane humide où les flux d'émission sont plus élevés (Lamto et Djougou).

En effet, en savane humide, une part importante des émissions d'azote réactif (N_r) par les feux de savanes est transportée vers l'équateur et déposée dans les autres biomes. Chen et al. (2010) ont montré que seulement 53% des émissions de N_r par les feux sont déposés dans les savanes, indiquant que les savanes africaines sont de net exportatrices de l'azote réactif vers les forêts tropicales.

Les flux d'émission d'azote oxydé sont largement dominés par la part biogénique qui représente entre 70 et 90 % du total en savane sèche, 60% en savane humide et en forêt. La contribution des émissions dues aux combustions de biomasse, à l'échelle annuelle, est de 25% à Banizoumbou et Katibougou en savanes sèches, de 33% à 40% en savane humide et en forêt équatoriale. Sur le site sahélien d'Agoufou, cette contribution est négligeable (< 1%). La contribution des feux domestiques est moins importante (11% à Agoufou et de 3 à 7 % pour les autres sites).

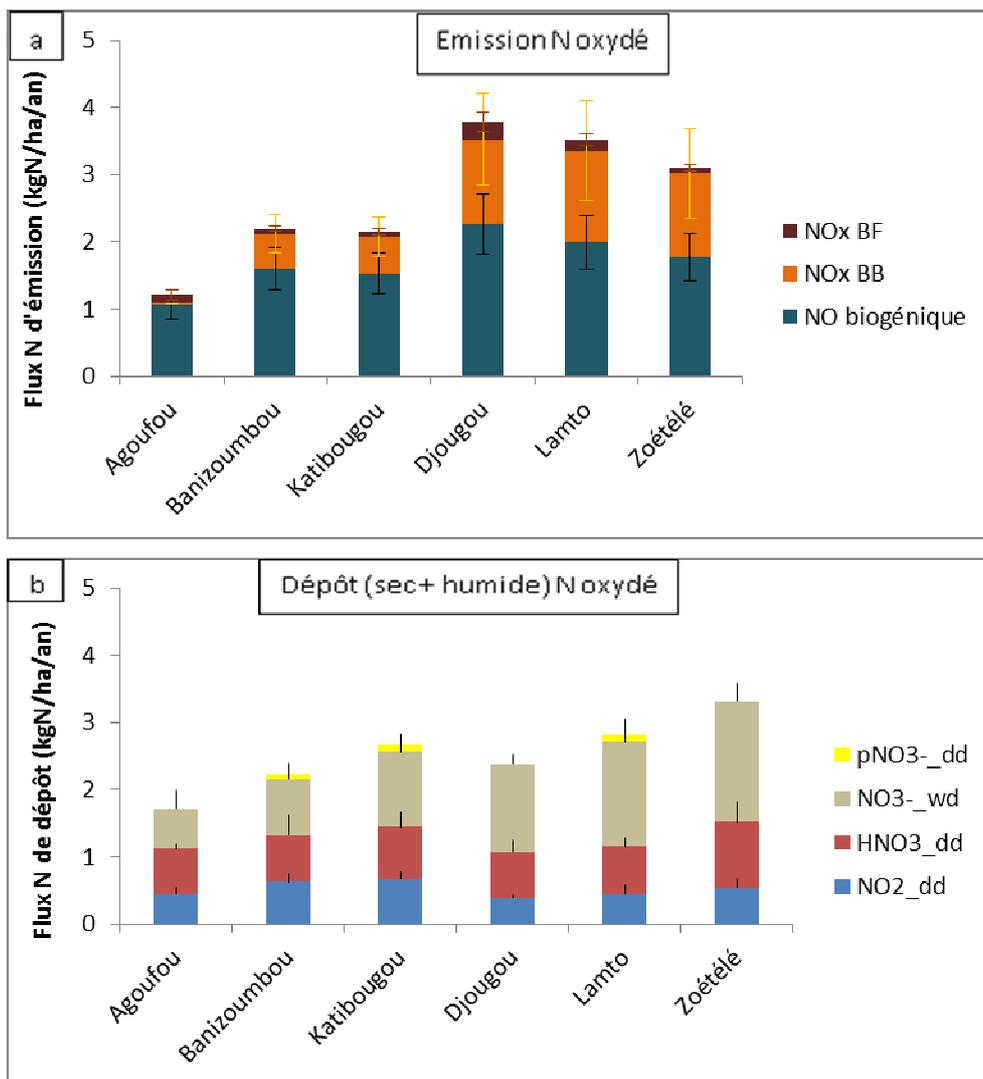


Figure 5.9 : Flux moyens annuels d'émission (a) et de dépôt (b) des composés d'azote oxydés pour les stations IDAF. **BF** : biofuel (feux domestiques) ; **BB** : biomass burning (combustion de biomasse) ; **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide. Les barres d'erreur représentent les incertitudes associées aux flux d'émission (a), et l'écart type des flux de dépôt sur la période d'étude 1998-2007 (b).

5.3.3. Bilan émission-dépôt des composés azotés réduits

Les flux d'émissions de composés azotés réduits considérés sont les émissions de NH_3 par volatilisation, combustion de biomasse et feux domestiques.

Le dépôt sec et humide des espèces azotées sous formes réduites (NH_3 , pNH_4^+ , et NH_4^+) seront référés comme NH_x par la suite. Dans ce bilan, l'émission de NH_3 par les processus microbiens dans le sol n'a pas été prise en compte.

Le calcul de la volatilisation de NH_3 a été brièvement présenté à la section 5.3.1, et plus de détails peuvent être trouvés dans Delon et al. (2010, 2011). L'application de 30% comme taux de volatilisation de NH_3 a conduit aux estimations suivantes : 3,4-7,7 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes

sèches, de l'ordre de $2,4 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en savanes humides et de $1 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en forêt (Zoétélé) (tableau 5.5). L'hypothèse selon laquelle l'émission serait constante au cours de l'année n'est évidemment pas exacte en raison des variations saisonnières dans l'absorption et l'émission dépendant de l'humidité du sol, la vitesse du vent, la qualité des aliments pour le bétail. Par conséquent, l'absence de mesure dans les régions reculées, le manque de données statistiques sur la répartition des bovins et la teneur du sol en azote conduit à de nombreuses hypothèses ; ce qui implique évidemment plusieurs incertitudes dans la détermination de la quantité exacte de NH_x émise. Mais le niveau relatif de volatilisation à partir des excréments d'animaux par rapport à d'autres sources de NH_3 est acceptable, comparé aux émissions à l'échelle globale (Bouwman et al., 1997 ; Galloway and Cowling, 2002).

La figure 5.10 présente la répartition des flux annuels d'émission et de dépôt de NH_x , et les incertitudes associées comme barre d'erreur (pour l'émission). Les valeurs annuelles de ces flux pour chaque station IDAF sont présentées dans le tableau 5.6 (section 5.3.4).

Les flux d'émission de N par NH_3 sont très élevés dans les sites sahéliens d'Agoufou et Banizoumbou ($7,5\text{-}8 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$), de même ordre de grandeur ($4 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) dans le site soudano-sahélien de Katibougou et dans les savanes humides (Djougou et Lamto), et très faible dans le site forestier de Zoétélé ($1,4 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$). Inversement, les flux des composés d'azote sous forme réduite (NH_x) se déposent en quantité plus importante en forêt ($9,3 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) à cause de la densité de la végétation et de la forte pluviométrie (les vitesses de dépôt sont alors plus fortes), et ce dépôt est moindre en savane sahélienne ($4 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$). Les mesures des concentrations d'ammoniac gazeux (NH_3) par les capteurs passifs montrent des valeurs plus élevées pour les trois sites des savanes sèches (6-7 ppb) par rapport aux sites des savanes humides et forêts où elles sont de même ordre de grandeur (4 ppb). Ce résultat est en accord avec les valeurs des émissions modélisées.

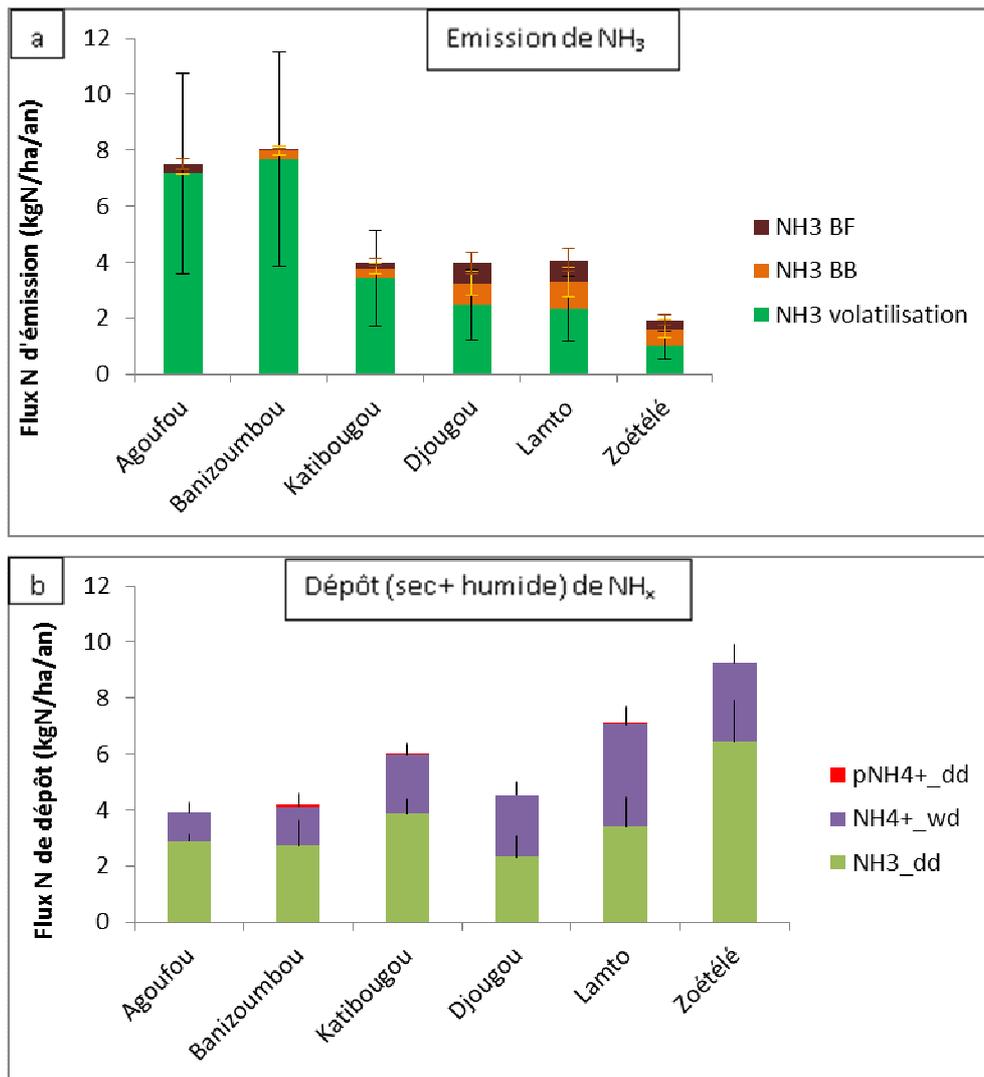


Figure 5.10 : Flux moyens annuels d'émission (a) et de dépôt (b) des composés d'azote réduits (NH_x) pour les stations IDAF. **BF** :feux domestiques ; **BB** :combustion de biomasse ; **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide. Les barres d'erreur représentent les incertitudes associées aux flux d'émission (a), et l'écart type des flux de dépôt sur la période d'étude 1998-2007 (b).

L'émission de NH_3 est largement dominée par les flux de volatilisation et représente entre 86 et 96% du total en savanes sèches, entre 57 et 62% en savanes humides et 53% en forêts. La contribution des combustions de biomasse à l'émission totale de NH_3 est de l'ordre de 31% en forêt (Zoétéélé), de 20-24% en savanes humides, et de 4-8% en savanes sèches (0% à Agoufou). La contribution des feux domestiques est de 1 à 6% en savanes sèches et de 16 à 19% en savanes humides et en forêts. Dans les écosystèmes de savanes humides et de forêts d'Afrique tropicale, les feux domestiques constituent une source, non négligeable, d'ammoniac.

5.3.4. Bilan annuel émission-dépôt des composés azotés

Le tableau 5.6 présente le bilan total d'émission et de dépôt d'azote atmosphérique incluant les formes oxydées et réduites pour chaque site d'étude. Un taux d'incertitude de 30% est appliqué aux flux de dépôt et de 45% aux flux d'émission.

Tableau 5.6 : Flux moyens annuels d'émissions et de dépôts et les incertitudes associées (en kgN.ha⁻¹.an⁻¹) des composés azotés oxydés et réduits dans les stations IDAF sur la période d'étude (1998-2007 pour le dépôt, et 2002-2006 pour l'émission).

Flux (kgN/ha/an)	N oxydé		N réduit		Bilan de N (total)	
	Dépôt N _{ox} *	Emission N-ox *	Dépôt NH _x	Emission NH _x	Dépôt total	Emission totale
Agoufou	1,7 ±0,5	1,2 ±0,5	3,9 ±1,2	7,5 ±3,4	5,6 ±1,7	8,7 ±3,9
Banizoumbou	2,2 ±0,7	2,2 ±1,0	4,2 ±1,3	8,0 ±3,6	6,4 ±1,9	10,2 ±4,6
Katibougou	2,7 ±0,8	2,1 ±1,0	6,0 ±1,8	4,0 ±1,8	8,7 ±2,6	6,1 ±2,8
Savane sèche (moyenne)	2,2 ±0,7	1,8 ±0,8	4,7 ±1,4	6,5 ±2,9	6,9 ±2,1	8,4 ±3,8
Djougou	2,4 ±0,7	3,8 ±1,7	4,5 ±1,4	4,0 ±1,8	7,0 ±2,1	7,8 ±3,5
Lamto	2,8 ±0,8	3,5 ±1,6	7,1 ±2,1	4,1 ±1,8	9,9 ±3,0	7,6 ±3,4
Savane humide (moyenne)	2,6 ±0,8	3,7 ±1,6	5,8 ±1,8	4,0 ±1,8	8,4 ±2,5	7,7 ±3,5
Zoétéélé (Forêt)	3,3 ±1,0	3,1 ±1,4	9,3 ±2,8	1,9 ±0,9	12,6 ±3,8	5,0 ±2,3

* N_{ox} : composés d'azote (N) oxydés

Sur le transect des écosystèmes, la forme oxydée du dépôt d'azote varie de 1,7 à 3,3 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ tandis que la forme réduite est comprise entre 3,9 et 9,3 kgN.ha⁻¹.an⁻¹. Pour chaque site (et chaque écosystème), l'azote se dépose en quantité 2 fois plus importante sous forme réduite (NH_x) que sous forme oxydée (N_{ox}). La contribution des composés oxydés au dépôt total représente 26-35% sur l'ensemble des écosystèmes, et celle des composés réduits 65-74%.

En savane sèche, l'azote est émis majoritairement sous forme réduite (NH_x ou NH₃), qui représente 65-86% de l'émission totale, tandis qu'en forêt l'émission d'azote est dominée par les composés oxydés (environ 61%). En savane humide, la contribution de NH₃ à l'émission totale d'azote (51-54%,) est proche de la contribution des composés oxydés (46-49%).

En savanes sèches, le flux moyen annuel d'azote est estimé entre 6,1 et 10,2 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ pour l'émission totale et entre 5,6 et 8,7 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ pour le dépôt total. Les flux d'émission sont plus importants pour les sites sahéliens d'Agoufou et de Banizoumbou à cause de l'émission prépondérante de l'ammoniac par volatilisation dans ces zones

agropastorales. Le dépôt d'azote est plus important dans le site soudano-sahélien de Katibougou en raison du caractère moins sec de sa végétation et de son climat par rapport aux deux autres sites. Pour l'écosystème type savane sèche, le flux moyen d'azote estimé est de $6,9 \pm 2,1 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ pour le dépôt total, et de $8,4 \pm 3,8 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ pour l'émission totale. Ces flux sont comparables à ceux rapportés par Delon et al. (2010) pour le bilan d'azote de l'écosystème sahélien réalisé pour l'année 2006 ($7,5 \pm 1,8 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ pour le dépôt total, et $8,4 \pm 3,8 - 12,5 \pm 5,9 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ pour l'émission totale).

En savanes humides, le flux moyen d'émission totale d'azote est de l'ordre de $7,7 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et le flux de dépôt est estimé entre $7,0$ et $10 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$. L'azote se dépose en quantité plus importante dans la savane humide guinéenne (ou pré forestière) de Lamto car sa végétation est plus dense et plus humide, et sa pluviométrie répartie sur toute l'année favorise un dépôt humide important. Pour l'écosystème type savane humide, le flux moyen annuel de dépôt total d'azote est estimé à $8,4 \pm 2,5 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$, du même ordre de grandeur que le flux d'émission totale ($7,7 \pm 3,5 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$).

Dans l'écosystème forestier de Zoétéélé, le flux moyen annuel de dépôt ($\sim 13 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) est plus de deux fois plus élevé que le flux d'émission d'azote ($5 \text{ kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$), l'émission de NH_3 étant faible. L'écosystème forêt constitue un puits pour NH_3 plutôt qu'une source en raison du caractère très humide de sa végétation et de son climat. De plus, les forêts tropicales africaines sont bordées au nord et au sud par les savanes, et les émissions d'azote réactif (N_r) par les combustions de biomasse sont transportées, de l'hémisphère Nord ou de l'hémisphère Sud selon les saisons, vers l'équateur et déposées dans les forêts (Chen et al., 2010), d'où le flux de dépôt plus important que le flux d'émission d'azote.

Avant de conclure ce chapitre du bilan de l'azote, nous avons comparé les flux de dépôt d'azote, estimés dans le cadre du programme IDAF, aux flux simulés par les modèles globaux à l'échelle de la terre dans Dentener et al. (2006). Dans le but d'essayer d'appréhender l'impact de ce dépôt sur les écosystèmes nous avons comparé le dépôt total d'azote estimé dans les écosystèmes tropicaux d'Afrique de l'Ouest et Centrale aux valeurs de charges critiques d'eutrophisation existantes dans la littérature.

5.4. Comparaison des flux de dépôt d'azote : mesures IDAF, modèles globaux

5.4.1. Mesures IDAF et multi modèle global de Dentener et al. (2006)

Dentener et al. (2006) ont utilisé 23 modèles globaux de transport de chimie atmosphérique, dans une approche multi modèle, pour calculer le dépôt d'azote réactif (NO_y , NH_x) et de sulfate (SO_x) sur les surfaces de la terre et des océans. Ces flux ont été estimés pour l'année 2000 et un scénario pour l'an 2030 est proposé. Les composés azotés oxydés, dénommés NO_y , regroupent NO , NO_2 , HNO_3 , HNO_4 , NO_3^- , $2\text{N}_2\text{O}_5$, PAN, nitrates organiques. Les composés azotés réduits, NH_x , regroupent NH_3 et NH_4^+ . Les émissions globales annuelles anthropogéniques (incluant la combustion de biomasse) et naturelles de NO_x , NH_3 , SO_2 , CO_2 et NMVOC ont été utilisées dans les modèles pour les simulations des flux de dépôt, et pour différents scénarios.

La capacité des modèles à représenter les dépôts totaux d'azote et de soufre a été évaluée. Les différentes simulations du dépôt (sec + humide) ont été confrontées aux mesures des différents réseaux internationaux (en Asie de l'Est (EANET), Amérique du Nord (NADP), Europe (EMEP), Afrique (IDAF), ...). Une simulation moyenne du dépôt de N par les 23 modèles est utilisée comme référence à l'échelle globale. Ces travaux de modélisation du dépôt total d'azote ($\text{NO}_y + \text{NH}_x$) à l'échelle globale (Dentener et al., 2006), ont été récemment utilisés dans plusieurs études comme une référence (Galloway et al., 2008 ; Bobbink et al., 2010 ; Bleeker et al., 2010 ; ...).

Dentener et al. (2006) ont rapporté que des quantités importantes sous forme de NO_y et NH_x sont déposées sur des végétations naturelles (non agricoles), typiquement entre 50 et 80%, indiquant l'importance du transport dans la dispersion des polluants atmosphériques provenant des émissions des zones industrielles et agricoles autour des écosystèmes naturels. Ces flux de dépôt continental modélisés peuvent être comparés aux flux d'azote estimés dans les écosystèmes d'Afrique de l'Ouest et Centrale dans le cadre du programme IDAF. Ainsi, nous avons collaboré avec F. Dentener afin de comparer et de discuter des résultats de modélisation avec les résultats IDAF des flux de dépôt d'azote à l'échelle du continent africain.

La figure 5.11 (a,b,c) présente un zoom sur l'Afrique de la simulation numérique moyenne du dépôt annuel d'azote sous forme oxydée (NO_y) (Dentener et al., 2006), comparée aux flux estimés dans le cadre du programme IDAF pour le continent africain.

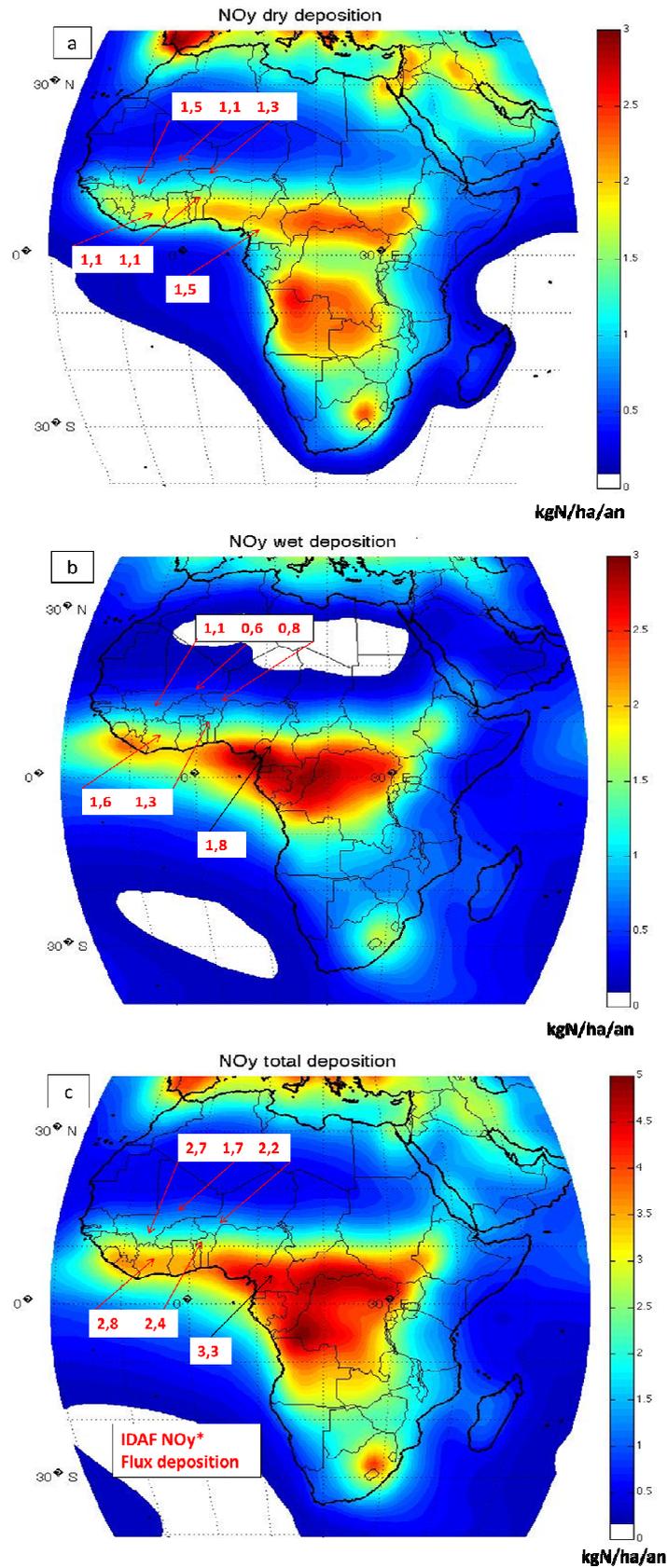


Figure 5.11 : Simulation du dépôt annuel d'azote sous formes oxydée (NO_y), à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF (1998-2007) pour le continent africain. (a) NO_y dépôt sec, (b) NO_y dépôt humide, (c) NO_y dépôt total d'azote sous forme réduite. L'unité en kgN/ha/an est modifiée de l'unité originale (mgN/m²/an). NO_y*=NO₂+HNO₃+NO₃⁻.

Nous rappelons que pour les mesures IDAF, le dépôt d'azote sous forme oxydée (NO_y), inclut les espèces NO_2 , HNO_3 , NO_3^- .

Pour le dépôt sec de NO_y (figure 5.11a), nous remarquons que le flux estimé en régions sahéliennes du Mali et du Niger par l'approche multi-modèle ($0,5-1 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) est légèrement plus faible, comparé à la valeur estimée dans le cadre du programme IDAF ($1,1-1,5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$). Le modèle prédit des valeurs plus élevées pour les savanes humides de Côte d'Ivoire et du Bénin ($1,5-2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) et pour la zone forestière du Cameroun ($\approx 2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$). Dans le cadre du programme IDAF, le flux NO_y estimé est de l'ordre de $1,1 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes humides et de $1,5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en forêt.

Pour le dépôt humide de NO_y (figure 5.11b), les flux estimés par les deux approches (multi-modèle, et cette étude) sont de même ordre de grandeur pour les savanes sèches ($0,5-1 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) du Mali et du Niger, et pour les savanes humides ($1-2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) de Côte d'Ivoire et du Bénin. Cependant pour la zone forestière du Cameroun, nous remarquons que le dépôt humide de NO_y estimé par l'approche multi modèle global ($2,5-3 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) est supérieur à celui estimé dans notre étude ($1,8 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$).

Ainsi pour le dépôt d'azote sous forme oxydée (figure 5.11c), nous notons que de façon générale, le flux total annuel estimé à l'échelle globale par la modélisation de l'ordre de $1-2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en régions sahéliennes, de $3-3,5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes humides et de $4-5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ dans l'écosystème forestier de Cameroun est en accord avec l'ordre de grandeur mesuré, dans le cadre du réseau IDAF.

Les valeurs un peu plus élevées des flux de dépôt de NO_y estimés dans les écosystèmes de savanes humides et de forêts par l'approche multi modèle global pourraient s'expliquer par la prise en compte de plusieurs composés azotés oxydés dans les modèles globaux par rapport à notre étude qui n'inclut que les espèces NO_2 , HNO_3 et NO_3^- . Toutefois, nous signalons que pour les écosystèmes d'Afrique de l'Ouest et Centrale, seule une fraction de 60 à 80% des flux estimés par l'approche multi modèle serait tombée sur les végétations naturelles (Dentener et al., 2006). Cependant pour les savanes sèches et arides, nous pensons que les émissions biogéniques de NO par les sols seraient un peu sous estimées dans ces modèles (Jaeglé et al. 2004). Nous notons, que la non-prise en compte des composés organiques azotés (par exemple, le PAN) dans notre bilan de dépôt d'azote n'influence pas significativement l'ordre de grandeur du dépôt total d'azote sous forme oxydée dans les écosystèmes africains.

Pour le dépôt d'azote sous forme réduite, la figure 5.12 (a,b,c) présente le zoom sur l'Afrique de la simulation numérique moyenne du dépôt annuel d'azote sous forme NH_x (Dentener et al., 2006), comparée aux flux estimés dans le cadre du programme IDAF pour le continent africain.

Nous remarquons à la figure 5.12a que le flux de dépôt sec de NH_3 estimé dans le cadre du programme IDAF pour les écosystèmes savanes sèches ($2,7-3,9 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) et forêt ($6,4 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) est 2 à 3 fois supérieur que celui simulé par l'approche multi modèle de Dentener et al. (2006) ($1-1,5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ pour la zone sahélienne de Mali et Niger, $\approx 2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ pour la forêt équatoriale du Cameroun). Nous pensons que cette différence entre les flux de dépôt sec de NH_3 estimés dans le cadre du programme IDAF et l'approche multi modèle de Dentener et al (2006) serait principalement due à la sous-estimation de la source de combustion de biomasse en savanes humides et forêts, et de la source agro pastorale en zone sahélienne dans les modèles.

Pour le dépôt humide de NH_x ou NH_4^+ (figure 5.12b), les flux simulés par les deux approches (multi modèle et cette étude) sont de même ordre de grandeur en savanes sèches ($1-2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$), en savane humide de Djougou ($2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) et en zone forestière ($3-3,5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) du Cameroun. Pour la savane humide de Lamto (Côte d'Ivoire), le flux de dépôt sec de NH_x estimé dans notre étude est de l'ordre de $3,6 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, plus élevé comparé au flux simulé à l'échelle globale ($2 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) par l'approche multi-modèle de Dentener et al. (2006).

Ainsi pour le dépôt d'azote sous forme réduite (NH_x) (figure 5.12c), le flux total moyen annuel du multi modèle global sur le continent africain ($1-3 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en régions sahéliennes, $3-4 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes humides et $4-5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en forêts équatoriales) est sous-estimé d'un facteur de 2 ou 3 des dépôts estimés à partir des mesures IDAF ($4-6 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$; $4,5-7 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$; $9,5 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ respectivement pour les écosystèmes de savanes sèches, savanes humides et forêts). Nous pensons que cette différence peut être reliée aux inventaires globaux d'émissions d'ammoniac (Bouwman et al. 2002a) utilisés dans ces modèles. L'émission de NH_3 n'est pas bien représentée dans les modèles globaux (Potter et al., 2010). Ceci met en évidence l'importance des mesures des composés azotés dans les sites reculés, comme ceux du réseau IDAF, pour valider ou améliorer les modèles globaux.

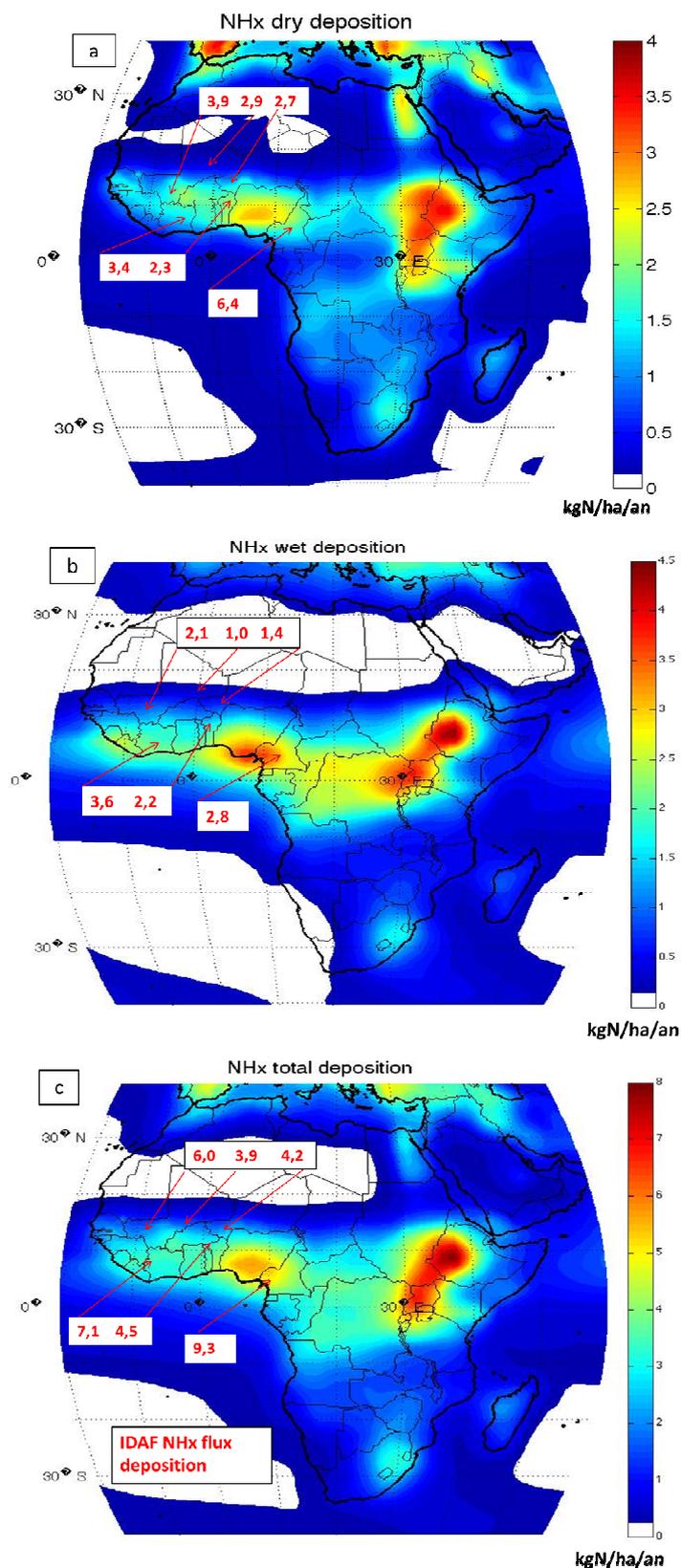


Figure 5.12 : Simulation du dépôt annuel d'azote sous formes réduite (NH_x) à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF (1998-2007) pour le continent africain. (a) NH_x dépôt sec, (b) NH_x dépôt humide, (c) NH_x dépôt total d'azote sous forme réduite. L'unité en kgN/ha/an est modifiée de l'unité originale ($\text{mgN/m}^2/\text{an}$).

La figure 5.13 présente la simulation numérique moyenne à l'échelle globale du dépôt total d'azote (Dentener et al., 2006), comparée aux flux moyens annuels estimés dans le cadre du programme IDAF pour le continent africain.

Le dépôt total annuel d'azote réactif estimé à partir des émissions globales totales de N (NO_y et NH_x) par modélisation est de l'ordre de 2-4 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en régions sahéliennes, 6-8 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en régions guinéennes et soudanaises (savanes humides), et 8-10 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en régions équatoriales (forêts) de l'Afrique de l'Ouest et Centrale.

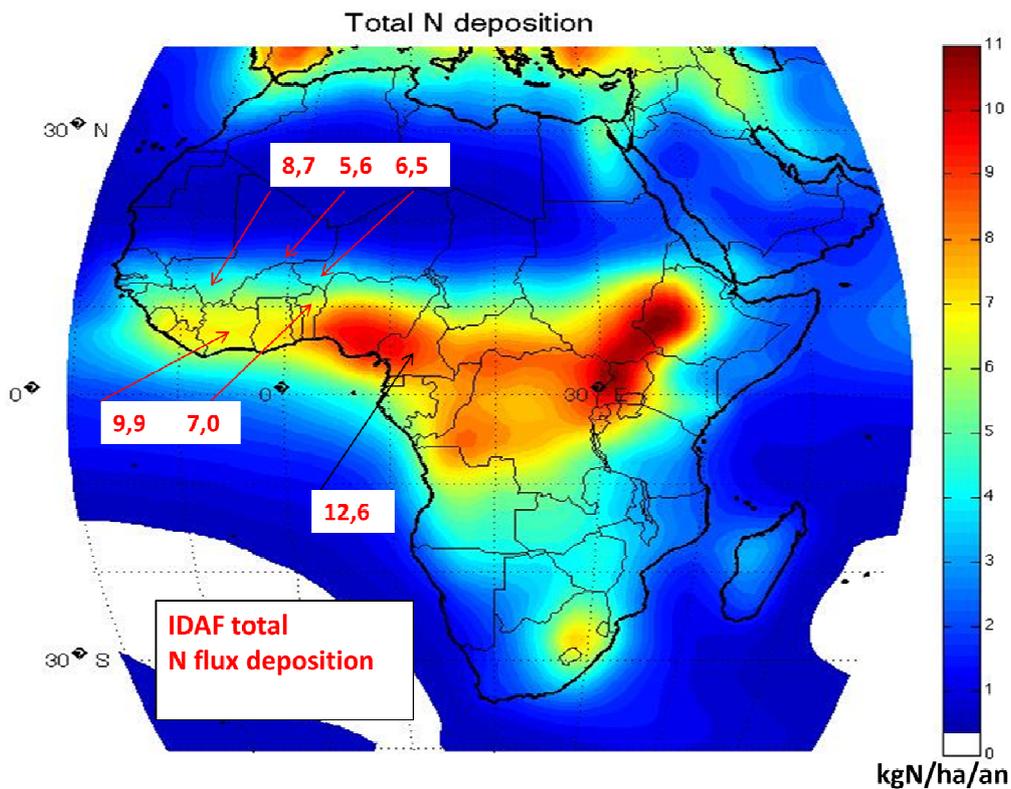
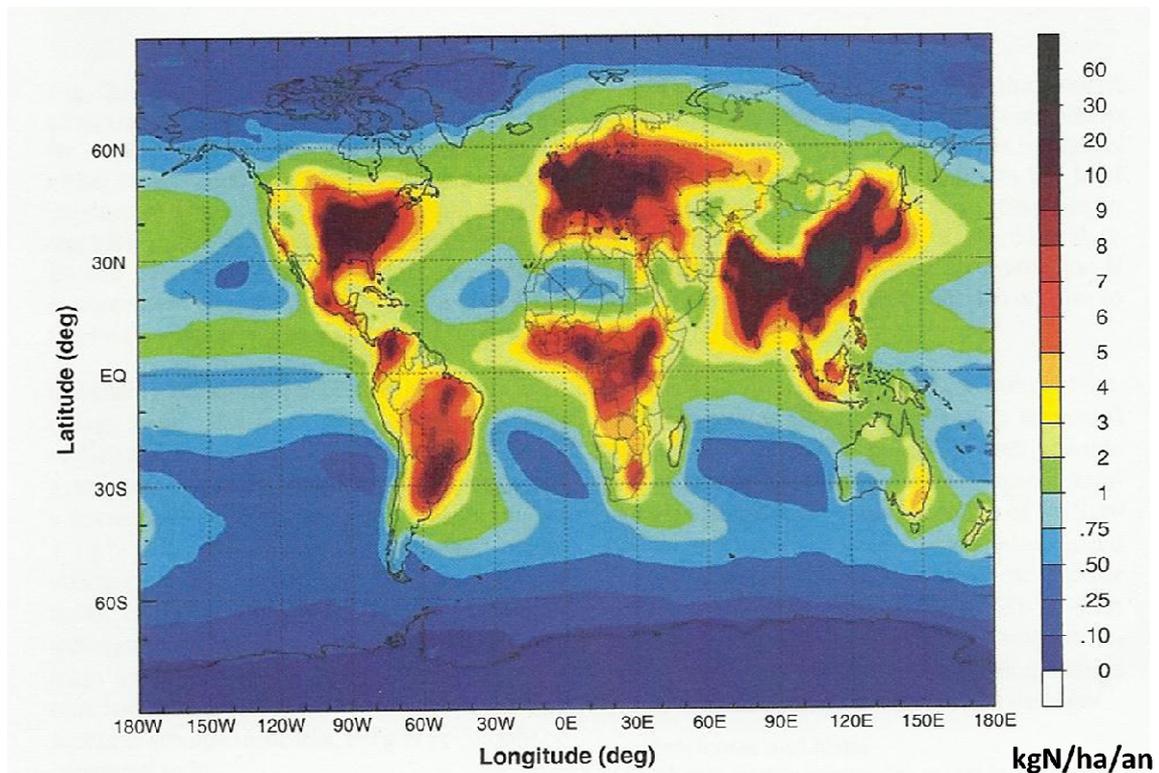


Figure 5.13 : Simulation du dépôt total annuel d'azote à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF (1998-2007) pour le continent africain.

Pour la zone sahélienne, le dépôt total d'azote est sous-estimé d'un facteur de 2 par la simulation moyenne des modèles globaux, comparé au flux total estimé en savanes sèches (6-9 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) dans le cadre du programme IDAF. Cette différence pourrait être reliée à la sous-estimation des fortes émissions biogéniques de NO par les sols secs du Sahel (« pulses »), et des quantités prépondérantes d'émissions de NH_3 dans ces zones agropastorales. Pour les écosystèmes de savanes humides et forêts, le dépôt total d'azote estimé par les modèles globaux demeure faible par rapport aux flux de dépôt estimés à partir

des mesures IDAF ($7-10 \text{ kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$, $13 \text{ kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ respectivement en savanes humides et en forêt (Zoétélé)). Toutefois, l'écart entre les deux estimations reste moindre pour les écosystèmes de savanes humides et forêts.

La figure 5.14 présente les résultats des simulations numériques moyennes à l'échelle globale du dépôt total d'azote (Dentener et al., 2006) pour tous les continents.



Figures 5.14 : Simulation du dépôt total annuel d'azote à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006) pour tous les continents. L'unité en $\text{kgN}/\text{ha}/\text{an}$ est modifiée de l'unité originale ($\text{mgN}/\text{m}^2/\text{an}$). (Source : Galloway et al., 2008).

L'analyse de ces résultats montre qu'à l'échelle globale, les régions de forte amplitude de dépôt total d'azote se trouvent en Amérique du Nord, en Europe, en Inde et en Asie de l'Est où le flux de dépôt de N peut atteindre des valeurs supérieures à $20 \text{ kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ dans certaines zones industrialisées. Pour l'Afrique et l'Amérique du Sud, les quantités totales d'azote déposées sont comparables. Dentener et al. (2006) ont indiqué qu'à l'échelle globale, environ 42% de tout NO_y et 40% de tout NH_x sont déposées sur des végétations naturelles. De façon générale, la comparaison des flux de dépôt d'azote simulé en Afrique à ceux des autres continents montre que le dépôt d'azote est aussi important sur le continent africain, particulièrement dans ses écosystèmes.

Dans cette section, nous avons comparé les valeurs moyennes des flux de dépôt d'azote estimés sur la période 1998-2007 dans le cadre du programme IDAF aux flux estimés à l'échelle globale pour l'année 2000 par modélisation (sur le continent africain). Nous signalons que par différents scénarios d'émissions, Dentener et al. (2006) ont prédit une augmentation des flux de dépôt de NO_y et NH_x pouvant atteindre un taux de 50 ou 100% à l'an 2030 en Asie et en Afrique (les pays en voie de développement). Toutefois, sur notre période d'étude, nous avons noté des variations interannuelles des flux de dépôt pouvant atteindre parfois 40% mais sans observer de tendance significative. Les sites de mesures du réseau IDAF restent peu influencés par les émissions industrielles ou anthropiques (à l'exception du site Amersfoort de l'Afrique du Sud).

5.4.2. Dépôt total d'azote dans les écosystèmes africains et charges critiques d'eutrophisation

Pour évaluer les effets probables du dépôt d'azote sur les écosystèmes africains, nous avons comparé les flux estimés dans cette étude aux seuils critiques d'eutrophisation disponibles dans la littérature. L'eutrophisation des milieux terrestres est généralement déclenchée par des apports excédentaires d'azote et par son accumulation dans l'écosystème. Le rôle de l'azote (N) dans les changements de la biodiversité a été largement étudié en Europe et en Amérique du Nord, avec la plupart des recherches portant sur les changements dans la composition et la diversité des espèces végétales (Goulding et al., 1997 ; Haddad et al., 2000 ; Bobbink et al., 2010).

La vulnérabilité des écosystèmes est établie en termes de « charges critiques » : charge critique azotée (eutrophisation) et charge critique d'acidité (acidification). Cette vulnérabilité est fonction des caractéristiques du sol, de la végétation et du climat. Les concepts de charge critique de N peuvent être basés sur une approche de calculs et de modèles (Spranger et al., 2008, Bobbink et al., 2010) ou sur une approche expérimentale appuyée par des mesures et des observations à long terme sur le terrain (charges critiques empiriques) (Bobbink et al., 1996, 2003). Comme une première approximation d'exprimer la vulnérabilité des différents écosystèmes à l'échelle globale, certains auteurs (Dentener et al., 2006 ; Bleeker et al., 2010) ont utilisé un seuil de dépôt d'azote de $10 \text{ kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$, basé sur les charges critiques disponibles principalement dans les écosystèmes tempérés de l'Europe (Bobbink et al., 1998). Les travaux récents de Bobbink et al. (2010) ont montré que cette charge critique peut varier considérablement de 5 à $30 \text{ kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$, notamment sur des écosystèmes tropicaux.

Afin d'estimer les charges critiques d'eutrophisation (et d'acidification) des écosystèmes à l'échelle globale, Bouwman et al. (2002b) ont extrapolé des données des études européennes aux différents écosystèmes dans une variété de conditions climatiques et pédologiques. Cette carte à l'échelle globale est la seule disponible dans la littérature. Elle est fondée sur un grand nombre d'hypothèses et des incertitudes dans les charges critiques qui ont été exprimées en supposant de larges gammes de leurs valeurs.

La figure 5.15 présente la distribution globale des estimations des charges critiques moyennes d'eutrophisation selon Bouwman et al. (2002b). Nous y avons superposé les flux de dépôt total d'azote estimés dans les écosystèmes africains à partir des mesures IDAF (l'unité d'origine $\text{meq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ est convertie en $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$).

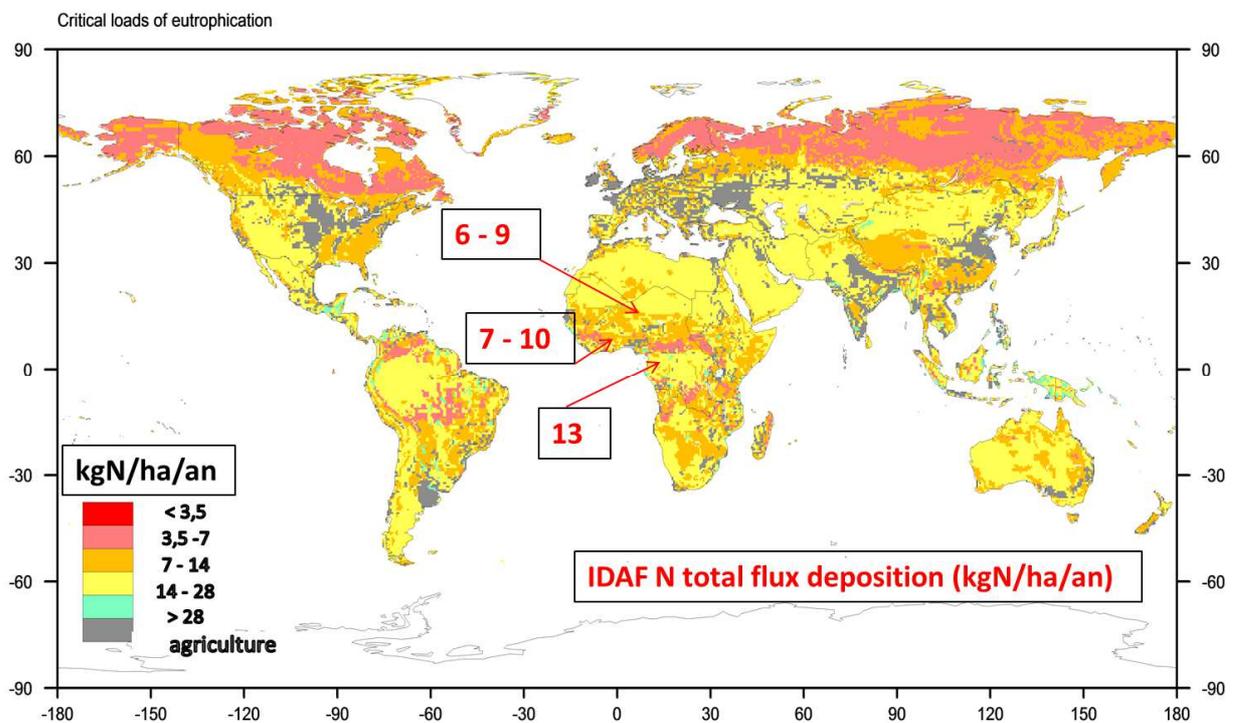


Figure 5.15 : Distribution globale des charges critiques moyennes d'eutrophisation (d'après Bouwman et al., 2002b), et flux de dépôt total d'azote estimé dans les écosystèmes africains à partir des mesures IDAF. (L'unité d'origine $\text{meq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ a été convertie en $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$).

Nous remarquons que la gamme de charge critique d'eutrophisation est de l'ordre de 7-14 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ pour les domaines de savanes et de l'ordre de 14-28 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ pour la forêt équatoriale (figure 5.15). Le seuil d'eutrophisation (7 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) serait donc atteint dans les écosystèmes de savanes (sèches et humides) d'Afrique de l'Ouest où nous avons estimé un dépôt total d'azote de l'ordre de 6-10 $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$. L'excès de charge pour un écosystème

donné est déterminé par la différence entre charges critiques et charges réelles (ou dépôt total de N dans le cas d'eutrophisation). Ainsi pour les écosystèmes de savanes sèches et humides d'Afrique de l'Ouest, nous évaluons un excès de charge d'eutrophisation de l'ordre de 2-3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, selon les estimations de Bouwman et al. (2002b).

Pour l'écosystème forêt tropicale, le seuil d'eutrophisation ($14 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) serait presque atteint à Zoétélé où le dépôt total d'azote estimé est de l'ordre de $13 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$. Toutefois, si un seuil de $10 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ est supposé comme charge critique d'eutrophisation (comme dans certaines études : Dentener et al., 2006 ; Bleeker et al., 2010), nous évaluons un excès de $3 \text{ kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ pour la forêt équatoriale. Cependant, Bouwman et al. (2002b) ont indiqué que la sensibilité des forêts tropicales humides à l'eutrophisation est supposée faible, avec une gamme de charge critique de 20-30 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$. En effet, plusieurs forêts humides sont limitées par le phosphore (P) (Bouwman et al., 1993 ; Vitousek et al., 1997) et non par l'azote (N).

Pour les systèmes tropicaux, il est actuellement difficile d'établir de réelle charge critique, mais Bobbink et al. (2010) ont affirmé qu'un dépôt d'azote supérieur de 20-30 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ peut potentiellement affecter sérieusement les écosystèmes de ces régions. Bouwman et al. (2002b) ont souligné que de nombreuses hypothèses existent dans l'estimation des charges critiques de N pour les tropiques. Il y a donc encore plusieurs incertitudes sur les vulnérabilités des écosystèmes tropicaux secs, incluant les savanes, les écosystèmes semi-arides, ... D'autres études supplémentaires avec des observations et des expérimentations sur le terrain sont nécessaires pour estimer les charges critiques d'eutrophisation afin d'évaluer l'impact du dépôt d'azote dans les écosystèmes tropicaux.

5.5. Conclusion

L'analyse de la base de données IDAF, avec ses trois composantes (chimie des pluies, des aérosols et des gaz), a permis d'établir un premier bilan d'azote à l'échelle des écosystèmes africains. Ce bilan d'azote inorganique est une composante importante du cycle de l'azote.

Un bilan de dépôt (sec et humide) d'azote a été réalisé sur la période d'étude 1998-2007 pour les sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Le dépôt sec d'azote sous forme gazeuse (NO_2 , HNO_3 , NH_3) varie de 3,4 à 5,3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes (sèches et humides), et est de l'ordre de 8 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en forêts. Le flux moyen annuel de dépôt sec d'azote sous

forme particulaire est estimé à 0,1-0,2 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ pour les écosystèmes de savanes, très faible comparé au dépôt sec sous forme gazeuse. Le dépôt humide d'azote estimé à partir des concentrations moyennes d'ammonium (NH₄⁺) et de nitrate (NO₃⁻) dans les pluies, et de la pluviométrie moyenne sur la même période de mesure, présente des valeurs moyennes annuelles comprises entre 1,6 et 3,2 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, entre 3,5 et 5,2 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes humides et est de l'ordre de 4,6 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts. Le dépôt humide d'azote est dominé en Afrique de l'Ouest et Centrale, par un dépôt sous forme réduite d'ammonium qui représente environ 62 à 70% du total.

A l'échelle des différents écosystèmes africains, le dépôt total d'azote (sec + humide) présente un gradient positif sur le transect : 6-9 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, 7-10 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savane humides, et 13 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts. Sur l'ensemble des écosystèmes, la contribution relative du dépôt sec sous forme gazeuse au dépôt total d'azote représente entre 46 et 71%, celle du dépôt humide entre 29 et 52%, et celle du dépôt sec sous forme particulaire est négligeable (2%). Ce bilan met en évidence l'importance des processus de dépôt sec pour les espèces gazeuses azotées. Le dépôt total sous forme réduite représente 65-74% du total dans les principaux écosystèmes africains.

Nous avons réalisé un bilan émission-dépôt des composés azotés oxydés et réduits à l'échelle de chaque écosystème sur la période 2002-2006. Le flux moyen d'émission totale est estimé à 8,4 ±3,8 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, à 7,7 ±3,5 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes humides, et à 5,0 ±2,3 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ en forêt. Le flux d'émission totale est de même ordre de grandeur que le dépôt moyen annuel d'azote dans les écosystèmes de savanes (sèches et humides) mais plus faible dans l'écosystème forestier, qui constitue plutôt un puits d'azote.

Enfin, nous avons conclu ce chapitre par une analyse comparative entre les mesures IDAF de dépôt d'azote et les résultats de modélisation globale de Dentener et al. (2006). La comparaison des valeurs moyennes des flux de dépôt d'azote estimés dans le cadre du programme IDAF avec ceux estimés à l'échelle globale par modélisation (Dentener et al., 2006) pour le continent africain a permis de montrer que :

- pour la zone sahélienne, le dépôt total d'azote est sous-estimé d'un facteur de 2 par l'approche multi modèle global ;
- pour les écosystèmes de savanes humides et forêts, le modèle sous-estime le dépôt total d'azote avec un écart moindre comparé aux mesures IDAF ;
- le dépôt total d'azote mesuré sur le continent africain est comparable aux ordres de grandeur simulés dans les pays en zones tempérés et industrialisés.

Ceci met en évidence l'importance des mesures des composés azotés dans les sites reculés, comme ceux du réseau IDAF, pour valider ou améliorer les modèles globaux. On peut aussi souligner l'importance dans le futur de mieux quantifier les émissions de composés azotés gazeux comme par exemple la source de NH_3 animale.

En comparant les flux de dépôt d'azote estimés dans notre étude (cadre IDAF) nous évaluons un excès de charge d'eutrophisation de 2-3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ pour les écosystèmes de savanes sèches et humides d'Afrique de l'Ouest, selon les estimations de « charges critiques d'eutrophisation » de Bouwman et al. (2002b). Pour l'écosystème forêt, nous évaluons un excès de charge de 3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$. Finalement, nous avons tenté une première évaluation de l'impact potentiel du dépôt total d'azote sur les écosystèmes africains.

Conclusion générale et perspectives

Ce travail de recherche, réalisé dans le cadre du programme scientifique IDAF, est une contribution à l'étude de l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère, problématique scientifique majeure en régions tropicales reconnues comme très actives en chimie atmosphérique à l'échelle régionale et globale. Mon étude repose principalement sur l'analyse d'un suivi spatio-temporel mensuel long terme de concentrations de gaz (NO_2 , HNO_3 , NH_3 , O_3 , et SO_2) mesurées par la méthode des capteurs passifs sur une période de dix ans.

La première étape de mon travail a permis de valider la base de données « gaz IDAF » comprenant 10 années de mesures. Cette étape m'a permis de regrouper et analyser les travaux de validation et d'inter-comparaison permettant ainsi d'établir la précision et la qualité des mesures. La reproductibilité des capteurs passifs IDAF a été estimée à 9,8%, 20%, 14,3%, 10% et 16,6% pour respectivement NO_2 , HNO_3 , NH_3 , O_3 , et SO_2 . La base de données IDAF obtenue pour les gaz est disponible sur le site : <http://idaf.sedoo.fr>.

L'analyse de cette base de données m'a permis :

- d'établir une première caractérisation et quantification à long terme des concentrations gazeuses à l'échelle des écosystèmes ;
- d'étudier les variations mensuelles, saisonnières, annuelles et interannuelles des concentrations des gaz mesurées pour chaque écosystème.

Cette étude a montré qu'en savanes sèches nous avons des niveaux de concentrations plus élevés pendant la saison humide. En revanche, les concentrations étaient plus élevées en savanes humides pendant la saison sèche. En forêts, aucune différence significative entre les saisons sèche et humide n'a été observée. Les concentrations moyennes annuelles de NH_3 , NO_2 et HNO_3 mesurées dans les savanes sèches sont plus élevées que celles mesurées dans les savanes humides et forêts. Les concentrations annuelles de NH_3 sont de l'ordre de 6-7.5 ppb en savanes sèches et 4-5 ppb en savanes humides et forêts. Les concentrations annuelles de NO_2 sont autour de 2-2,5 ppb en savanes sèches et 1 ppb en savanes humides et forêts, tandis que les concentrations annuelles de HNO_3 sont autour de 0,5 ppb en savanes sèches et 0,3 ppb en savanes humides et forêts. Sur le transect savanes sèches-savanes humides- forêts, les concentrations des gaz azotés sont prédominantes en savanes sèches. Les concentrations moyennes annuelles d' O_3 et SO_2 sont faibles pour tous les écosystèmes africains étudiés. Les

concentrations moyennes annuelles d'O₃ sont autour de 11-14 ppb en savanes sèches et humides et 4-5 ppb en forêts, et SO₂ autour de 0,5-1 ppb en savanes sèches et humides et 0,3 ppb en forêts. Ce suivi-spatio-temporel des concentrations des gaz a montré l'importance des sources biogéniques de NO par les sols et la source animale (NH₃) pendant la saison humide en savanes sèches, et la source de feux de savanes pendant la saison sèche en savanes humides. En forêts, la source de combustion de biomasse en saison sèche est équivalente aux émissions par les sols en saison humide. Les résultats sur les mesures des concentrations des gaz ont déjà fait l'objet d'une publication (Adon et al., 2010).

Les vitesses de dépôt (V_d) ont été calculées en utilisant le modèle « big-leaf » de Zhang et al. (2003b) et les flux de dépôt sec sont estimés par la méthode inférentielle. Dans ce cadre j'ai adapté et validé un module de dépôt sec « off-line » basé sur le modèle. Les conditions de surface (LAI MODIS) et météorologiques (forçage ALMIP) spécifiques aux sites de mesures des concentrations ont été prises en compte dans le modèle de dépôt, et ont permis ainsi de simuler les V_d représentatives des sites IDAF en termes de climat et de végétation. Sur le transect des écosystèmes, les résultats des simulations ont montré que la vitesse de dépôt sec augmente avec la densité de la végétation. Ainsi les plus faibles valeurs, pour tous les gaz, ont été obtenues en savanes sèches et les plus élevées en forêts. Pour un site donné, les valeurs de V_d sont plus élevées en saison humide qu'en saison sèche pour tous les gaz. Sur le transect des écosystèmes, les valeurs moyennes mensuelles de V_d varient de 0,16 à 0,84 cm.s⁻¹ pour SO₂, de 0,16 à 0,99 cm.s⁻¹ pour NH₃, de 0,14 à 0,40 cm.s⁻¹ pour O₃, de 0,13 à 0,37 cm.s⁻¹ pour NO₂ et de 0,48 à 2,56 cm.s⁻¹ pour HNO₃.

Pour chaque écosystème, les valeurs mensuelles, saisonnières et annuelles des flux de dépôt sec des gaz (NO₂, HNO₃, NH₃, O₃, et SO₂) ont été estimées. Les résultats montrent un dépôt sec beaucoup plus important en saison humide pour tous les gaz en savanes sèches dû à des concentrations et des vitesses de dépôt sec plus élevées en cette saison. En savanes humides, le dépôt sec est légèrement plus élevé en saison sèche pour certains gaz (NO₂, HNO₃) à cause des concentrations très élevées en cette saison, dues aux feux de biomasse. En forêts, l'écart du dépôt sec entre les saisons humide et sèche est beaucoup plus réduit car les concentrations et les vitesses de dépôt sec sont de même ordre de grandeur entre les deux saisons. Sur le transect des écosystèmes, la moyenne annuelle des flux de dépôt sec d'O₃ sur la période d'étude varie de 11,3±4,7 à 17,5±3,0 kg.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes sèches, de 17,5±3,0 à 19,2±2,9 kg.ha⁻¹.an⁻¹ en savanes humides, et de 8,2±0,6 à 10,2±2,1 kg.ha⁻¹.an⁻¹ en forêts.

Le flux annuel de dépôt sec de SO_2 présente des valeurs faibles et aussi une faible variabilité sur le transect des écosystèmes et varie de 0,5 à 0,7 $\text{kgS}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes sèches, de 0,8 à 1,0 $\text{kgS}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes humides et en forêts. Pour les gaz azotés, le dépôt moyen annuel de NO_2 varie de 0,4 à 0,8 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, HNO_3 de 0,7 à 1,0 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, et NH_3 de 2,3 à 6,5 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ sur le transect savane sèches-savanes humides-forêts. Le dépôt sec annuel total d'azote par les trois gaz azotés ($\text{N-NO}_2+\text{N-HNO}_3+\text{N-NH}_3$) est beaucoup plus important en forêts (8,0-8,5 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) à cause de la plus grande quantité d'azote déposé par NH_3 et il est de même ordre de grandeur en savanes humides (3,4-4,6 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) et en savanes sèches (4-5,3 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$). L'azote se dépose majoritairement sous forme de NH_3 sur le transect d'écosystème et représente 67-80% du dépôt total d'azote. Sur le transect, le pourcentage de contribution de NO_2 au dépôt total d'azote sous forme gazeuse varie de 7 à 16% et celle de HNO_3 de 11 à 20% selon les écosystèmes. Un article relatif aux principaux résultats des flux de dépôt sec des gaz présentés dans cette thèse étant en cours de rédaction.

Dans le chapitre 5 de ce mémoire, j'ai réalisé un bilan de dépôt sec et humide d'azote pour les sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale. Ce bilan de dépôt total d'azote est présenté à l'échelle des sites pour les trois principaux écosystèmes africains. Le flux moyen annuel de dépôt sec d'azote sous forme particulaire (pNH_4^+ , pNO_3^-) est de l'ordre de 0,2 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ pour les écosystèmes de savanes, très faible comparé au dépôt sec sous forme gazeuse. Le flux moyen annuel du dépôt humide d'azote (NH_4^+ , NO_3^-) sur la période d'étude (1998-2007) est compris entre 1,6 et 3,2 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes sèches, entre 3,5 et 5,2 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes humides et est de l'ordre de 4,6 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en forêts. Le dépôt humide d'azote est dominé en Afrique de l'Ouest et Centrale, par un dépôt sous forme réduite d'ammonium qui représente environ 62 à 70% du total. A l'échelle des différents écosystèmes africains, le dépôt total d'azote (sec + humide) estimé présente un gradient positif et est de l'ordre de 6-9 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes sèches, 7-10 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en savanes humides, et 13 $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ en forêts. Sur l'ensemble des écosystèmes, la contribution relative du dépôt sec sous forme gazeuse au dépôt total d'azote représente entre 46 et 71% et celle du dépôt humide entre 29 et 52% (celle du dépôt sec sous forme particulaire est négligeable). Ce bilan met en évidence l'importance des processus de dépôt sec pour les espèces gazeuses azotées. Le dépôt total sous forme réduite représente 65-74% du total dans les principaux écosystèmes africains.

Nous avons couplé ce bilan de dépôt d'azote atmosphérique à un bilan d'émission des composés azotés établis par modélisation (Delon et al, 2010, 2011). L'étude du bilan émission-dépôt des composés azotés oxydés et réduits à l'échelle de chaque écosystème sur la

période 2002-2006 a montré un flux d'émission totale estimé de même ordre de grandeur que le dépôt moyen annuel d'azote dans les écosystèmes de savanes (sèches et humides) et plus faible dans l'écosystème forestier, qui constitue plutôt un puits d'azote. Dans ce cadre, mes travaux de thèse m'ont permis d'être co-auteur de 2 publications (Delon et al, 2010, 2011).

Les flux moyens de dépôt d'azote estimés dans ce travail ont été comparés aux flux estimés à l'échelle globale par modélisation (Dentener et al., 2006) pour le continent africain. Le dépôt total d'azote est de façon générale sous-estimé par le modèle, comparé aux mesures IDAF pour l'ensemble des écosystèmes ; avec une sous estimation maximale d'un facteur 2 en zone sahélienne.

Finalement, nous avons essayé dans ce travail d'estimer l'impact potentiel des flux de dépôt d'azote sur les écosystèmes tropicaux africains. Ainsi, nous avons comparé les flux de dépôt d'azote estimés dans notre étude (cadre IDAF) aux charges critiques d'eutrophisation existantes dans la littérature (Bouwman et al., 2002b). Les résultats montrent un excédent de charge de 2-3 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ pour les écosystèmes de savanes sèches et humides d'Afrique de l'Ouest, et de 3 kgN.ha⁻¹.an⁻¹ pour l'écosystème de forêt si le seuil critique d'eutrophisation est supposé à 10 kgN.ha⁻¹.an⁻¹. Il faut noter que plusieurs incertitudes demeurent sur les valeurs des charges critiques d'eutrophisation pour les tropiques. Ainsi, afin d'évaluer l'impact du dépôt d'azote dans les écosystèmes tropicaux des études supplémentaires avec des observations sur le terrain sont nécessaires.

Au terme de ce travail, nous pouvons affirmer, sans prétention, que cette étude répond au principal objectif du réseau IDAF/DEBITS : « l'étude des dépôts secs et humides atmosphériques ». Mon travail a permis, en particulier, d'analyser et de quantifier les flux de dépôt sec sous forme gazeuse, complétant ainsi les synthèses déjà réalisées concernant les flux de dépôt humide.

Aujourd'hui pour améliorer ce travail, il apparaît important de lever les incertitudes qui pèsent dans la détermination des vitesses de dépôt sec modélisées. Dans le cadre du réseau IDAF, une détermination expérimentale des flux de dépôt sec par d'autres méthodes (par exemple la méthode des gradients) sur les sites de mesure serait nécessaire pour évaluer la différence entre les flux estimés par la méthode inférentielle et ceux déterminés expérimentalement.

A l'issue de ce travail, il apparaît indispensable de régionaliser l'estimation des flux de dépôt sec pour passer de l'échelle des sites IDAF à l'échelle de tous les écosystèmes africains. Pour cela, le module de dépôt sec « off-line » développé dans cette étude pour les sites IDAF

sera inclus dans le modèle régional Reg-CM (Regional-Climatic Model). Le modèle Reg-CM sera utilisé pour modéliser les tendances régionales observées du dépôt sec ; et il sera validé par la base de données IDAF. Une des originalités de cette modélisation sera d'utiliser dans le futur le module de chimie d'interactions gaz/particules développé au Laboratoire d'Aérodologie couplé avec le modèle Reg-CM pour améliorer les simulations de dépôts secs et humides.

Enfin, il faut souligner que jusqu'à présent, le service d'observation IDAF a conduit des études à l'échelle régionale des grands écosystèmes africains naturellement ou peu perturbés. Or, la pression anthropique affecte déjà certains sites comme la savane sèche d'Amersfoort en Afrique du Sud (Martins et al, 2007). On estime que dans les prochaines décennies la pression démographique sera plus importante dans les régions africaines avec une utilisation croissante de fertilisant ou encore une augmentation des combustions de biomasse, domestiques ou de fuel fossiles; ce qui induira une forte augmentation des émissions des gaz et particules. Il apparaît donc essentiel aujourd'hui de poursuivre ces mesures et de prendre aussi en considération l'écosystème urbain africain pour documenter son impact sur l'évolution de la composition chimique atmosphérique et sur l'environnement. Ainsi, une étude en zone urbaine a été initiée en 2008 lors du projet POLCA (POLLution des CAPitales Africaines). L'objectif est d'étudier la pollution des capitales africaines et comprend un volet de mesure des dépôts atmosphériques. Ces nouvelles observations long terme sont en parfaite adéquation avec les échelles temporelles requises dans l'étude des liens évolution des émissions/concentrations/impacts environnementaux tel que l'eutrophisation et l'acidification des milieux.

Références bibliographiques

- Abbadie, L., Gignoux, J., Le Roux, X., Lepage, M.: Lamto: Structure, Functioning, and Dynamics of a Savanna Ecosystem, *Ecological Studies* 179, 415pp., 2006.
- Adon, M., Galy-Lacaux, C., Yoboué, V., Delon, C., Lacaux, J. P., Castera, P., Gardrat, E., Pienaar, J., Al Ourabi, H., Laouali, D., Diop, B., Sigha-Nkamdjou, L., Akpo, A., Tathy, J., Lavenu, F., and Mougin, E.: Long-term measurements of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in Africa using passive samplers, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7467-7487, doi : 10.5194/acp-10-7467-2010, 2010.
- Akpo, A., Galy-Lacaux, C., Laouali, D., Gardrat, E., and Castéra, P.: Five years study of rainwater chemistry and wet deposition in the wet savanna of Djougou, Benin (West Africa). Soumis à ACPD, décembre 2010.
- Al-Ourabi, H.: Etude expérimentale de gaz azotés, du dioxyde de soufre et de l'ozone à l'échelle des écosystèmes de l'Afrique tropicale: Application à l'estimation des dépôts secs gazeux dans le cadre du réseau IDAF, PhD Thesis, Université Paul Sabatier-Toulouse III, 2002.
- Al-ourabi, H. and Lacaux, J. P.: Dry and wet deposition for nitrogen and sulphur at seven IDAF stations in Tropical Africa. International Global Atmospheric Chemistry (IGAC), Symposium, Crete, Greece, 18–25 September, 2002.
- Al-ourabi H. and J.P.Lacaux: Measurements of the deposition for nitrogen and sulphur at seven IDAF stations in tropical Africa by use of diffusion samplers, September 13-19, 1999, *International Global Atmospheric Chemistry (IGAC)*, Symposium, Bologna, Italie, 1999.
- Amraoui, M., DaCamara, C. C., and Pereira, J. M. C.: Detection and monitoring of African vegetation fires using MSG-SEVIRI imagery, *Remote sensing of Environment*, 114, 1038-1052, 2010.
- Andersen, H. V. and Hovmand, M. F.: Ammonia and nitric acid dry deposition and throughfall, *Water, Air and Soil Pollution*, 85, 2211–2216, 1995.
- Andersen, H. V., Hovmand, M. F., Hummelshoj, P., and Jensen, N. O.: Measurements of ammonia flux to a spruce stand in Denmark, *Atmos. Environ.*, 27A, 189-202, 1993.
- Andersen, H. V., Hovmand, M. F., Hummelshoj, P., and Jensen, N. O.: Measurements of ammonia concentrations, fluxes and dry deposition velocities to a spruce forest 1991-1995, *Atmos. Environ.*, 33, 1367-1383, 1999.
- Andreae, M. O. and Merlet, P.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochemical Cycles*, 15, 955-966, 2001.
- Andreae M. O., Browell, E. V, Gregory, G. L., Harris, R. C., Hill Jacob, D. J., Pereira, M. C., Sachse, G. W., Setzer, A. W., Silva Dias, P. L., Talbot, R. W., Torres, A. L., Wofsy, S. C.: Biomass burning emissions and associated haze layers over Amazonia. *J.Geophys. Res.*, 93, 1509-1527, 1988.

- Andreae, M. O., Chapuis, A., Cros, B., Fontan, J., Helas, G., Justice, C., Kaufman, Y. J., Minga, A., and Nganga, D.: Ozone and Aitken nuclei over Equatorial Africa: Airborne observations during DECAFE 88, *J. Geophys. Res.*, 97, 6137–6148, 1992.
- Andreae, M., Berresheim, H., Bingemer, H., Jacob, D., Lewis, B., Li, S.-M., and Talbot, R.: The atmospheric sulfur cycle over the Amazon basin, 2, Wet Season, *J. Geophys. Res.*, 95, 16,813–16,824, 1990.
- Arndt, R., Carmichael, G. R., Streets, D. G., and Bhatti, N.: Sulfur dioxide emissions and sectorial contributions to sulfur deposition in Asia, *Atmos. Environ.*, 31, 1553-1572, 1997.
- Aylor, D. E.: Modeling spore dispersal in a barley crop, *Agricultural Meteorology* 26, 215-219, 1982.
- Ayers G.P., et al.: Passive gas samplers, Rapport CSIRO, division of atmospheric research, 1994.
- Bakwin, P. S., Wofsy, S. C., and Fan, S.-M.: Measurements of reactive nitrogen oxides (NO_y) within and above a tropical forest canopy in the wet season, *J. Geophys. Res.*, 95, 16765-16772, 1990.
- Bakwin, P. S., Wofsy, S. C., and Fan, S.-M.: Measurement of NO_x and NO_y concentrations and fluxes over Arctic tundra, *Journal of Geophysical Research* 97, 16545-16557, 1992.
- Baldocchi, D. D.: A multi-layer model for estimating sulfur dioxide deposition to a deciduous oak forest canopy, *Atmos. Environ.*, 22, 869–884, 1988.
- Baldocchi, D. D., Hicks, B. B., and Camara, P.: A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces, *Atmos. Environ.*, 21, 91–101, 1987.
- Balme M., Vischel T., Lebel T., Peugeot C, Galle S.: Assessing the water balance in the sahel : Impact of small scale rainfall variability on runoff, Part1: Rainfall variability analysis, *Journal of Hydrology*, vol 331, n°1-2, pp336-348, 2006.
- Barnett, D., and Davis, E. G.: A GC method for the determination of sulphur dioxide in food headspaces, *Journal of Chromatographic Science* 21, 205–208, 1983.
- Barret, B., Williams, J. E., Bouarar, I., Yang, X., Josse, B., Law, K., Pham, M., Le Flochmoen, E., Lioussé, C., Peuch, V. H., Carver, G. D., Pyle, J. A., Sauvage, B., van Velthoven, P., Schlager, H., Mari, C., and Cammas, J.-P.: Impact of West African Monsoon convective transport and lightning NO_x production upon the upper tropospheric composition: a multi-model study, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, doi:10.5194/acp-10-5719-2010, 2010.
- Bartholomé, E. and Belward, A.S.: GLC2000 : a new approach to global land cover mapping from Earth observation data, *International Journal of Remote Sensing*, vol. 26(9), 1959-1977, 2005.
- Bascomb, R., Bromberg, P. A., Costa, D. L., Devlin, R., Dockery, D. W., Frampton, M. W., Lambert, W., Samet, J. M., Speizer, F. E., and Utell, M.: Health effects of outdoor air pollution, *American Journal of Respiration and Critical Care in Medicine*, 153, 477-498, 1996.
- Bates, T., Scholes, M., Doherty, S., and Young, B.: IGAC Science Plan and Implementation Strategy IGBP Report 56, IGBP Secretariat, Stockholm, Sweden, 44 pp., 2006.
- Bates, T. S., Lamb, B. K., Guenther, A., Dignon, J., and Stoiber, R. E.: Sulfur emissions to the atmosphere from natural sources, *J. Atmos. Chem.*, 14, 315–317, 1992.

- Binkley, D. and Richter, D.: Nutrient cycles and H^+ budgets of forest ecosystems, *Adv. Ecol. Res.*, 16, 1-51, 1987.
- Bleeker, A., Hicks, W. K., Dentener, F., Galloway, J., and Erisman, J. W.: N deposition as a threat to the World's protected areas under the Convention on Biological Diversity, *Environmental Pollution*, in press, pp. 1-9, 2010.
- Bobbink, R., Hornung, M., and Roelofs, J. G. M.: Empirical Nitrogen Critical Loads for Natural and Semi-Natural Ecosystems, in: *Manual on Methodologies and Criteria for Mapping Critical Levels/Loads and Geographic Areas where they are Exceeded*, edited by: B. Werner and T. Spranger, UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Federal Environmental Agency (Umweltbundesamt), Berlin, pp. III.1-III.45. (available at www.icpmapping.com), 1996.
- Bobbink, R., Hornung, M. and Roelofs, J. G. M.: The effects of air-borne nitrogen pollutants on species diversity in natural and semi-natural European vegetation, *J. Ecol.* 86, 717–738, 1998.
- Bobbink, R., Ashmore, M., Braun, S., Flückiger, W., and van den Wyngaert, I. J. J.: Empirical nitrogen critical loads for natural and semi-natural ecosystems: 2002 update, in: *Empirical critical loads for nitrogen*, edited by: B. Achermann and R. Bobbink, . Swiss Agency for Environment, Forest and Landscape SAEFL, Berne, Switzerland, pp. 43–170, 2003.
- Bobbink, R., Hicks, K., Galloway, J., Spranger, T., Alkemade, R., Ashmore, M., Bustamante, M., Cinderby, S., Davidson, E., Dentener, F., Emmett, B., Erisman, J.-W., Fenn, M., Gilliam, F., Nordin, A., Pardo, L., and DeVries, W.: Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: a synthesis, *Ecological Applications*, 20 (1), pp. 30-59, 2010.
- Boone A., De Rosnay, P., Balsamo, G., Beljaars, A., Chopin, F., Decharme, B., Delire, C., Ducharne, A., Gascoin, S., Grippa, M., Guichard, F., Gusev, Y., Harris, P., Jarlan, L., Kergoat, L., Mougín, E., Nasonova, O., Norgaard, A., Orgeval, T., Ottl, C., Pocard-Leclercq, I., Polcher, J., Sandholt, I., Saux-Picart, S., Taylor, C., and Xue, Y.: The AMMA Land Surface Model Intercomparison Project (ALMIP), *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 1865–1880, doi:10.1175/2009BAMS2786.1, 2009.
- Boschetti, L., Eva, H. D., Brivio, P. A., and Grégoire, J. M.: Lessons to be learned from the comparison of three satellite-derived biomass burning products, *Geophys. Res. Lett.*, 31 (L21501), doi :10.129/2004GL021229, 2004.
- Boulve, M.: *Etude des capteurs passifs pour la mesure de concentrations atmosphériques*, DESS Université Paul Sabatier, 1996-1997.
- Bourliere, F. and Hadley, M.: Present-day savannas: an overview, In: Bourliere, F. (ed.), *Ecosystems of the World 13: Tropical Savannas*, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam, pp.1-15, 1993.
- Bouwman, A. F., Fung, I., Matthews, E., and John, J.: Global analysis of the potential for N_2O production in soils, *Global Biogeochem. Cycles*, 7, 557–597, 1993.
- Bouwman, A. F., Lee, D. S., Asman, W. A. H., Dentener, J. F., van de Hoek, K. W., Olivier, J. J. G.: A global emission inventory for ammonia, *Glob. Biogeochem. Cycles*, 11, 561-587, 1997.

- Bouwman, A. F., Boumans, L. J. M., and Batjes, N. H.: Estimation of global NH₃ volatilization loss from synthetic fertilizers and animal manure applied to arable lands and grasslands, *Global Biogeochem. Cycles*, 16(2), 1024, doi: 10.1029/2000GB001389, 2002a.
- Bouwman, A. F., Van Vuuren, D. P., Derwent, R. G., and Posch, M.: A global analysis of acidification and eutrophication of terrestrial ecosystems, *Water Air Soil Pollut.*, 141, 349–382, doi:10.1023/A:1021398008726, 2002b.
- Brimblecombe, P., Hara, H., Houle, D., and Novak, M.: Acid Rain – Deposition to Recovery, reprinted from *Water Air and Soil Pollution*, volume 7, issues 1-3, Springer edition, 2007.
- Brocard, D., Galy-Lacaux, C., Lacaux, J. P., Kouadio, G., and Yoboué, V.: Emissions from the combustion of biofuels in western Africa, in: *Global Biomass burning*, edited by: Levine J.S., pp. 350-360, MIT Press, Cambridge, Mass, 1996.
- Brook, J., Zhang, L., Franco, D., and Padro, J.: Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of air pollutant dry deposition over North America, Part I: Model development, *Atmos. Environ.*, 33, 5037–5052, 1999a.
- Brook, J., Zhang, L., Franco, D., and Padro, J.: Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of air pollutant dry deposition over North America, Part II: Review of past measurements and model results, *Atmos. Environ.*, 33, 5053–5070, 1999b.
- Carmichael, G. R., Ferm, M., Thongboonchoo, N., Woo, J.-H., Chan, L. Y., Murano, K., Viet, P. H., Mossberg, C., Bala, R., Boonjawat, J., Upatum, P., Mohan, M., Adhikary, S. P., Shrestha, A. B., Pienaar, J. J., Brunke, E. B., Chen, T., Jie, T., Guoan, D., Peng, L. C., Dhiharto, S., Harjanto, H., Jose, A. M., Kimani, W., Kirouane, A., Lacaux, J. P., Richard, S., Barturen, O., Cerda, J. C., Athayde, A., Tavares, T., Cotrina, J. S., and Bilici, E.: Measurements of sulfur dioxide, ozone and ammonia concentrations in Asia, Africa, and South America using passive samplers, *Atmos. Environ.*, 37, 1293-1308, 2003.
- Carmichael, G. R., Hong, M. S., Ueda, H., Chen, L. L., Murano, K., Kang, C., and Shim, S.: Aerosol composition at Cheju Island, Korea, *J. Geophys. Res.*, 102, 6047–6061, 1997.
- Carmichael, G. R., Zhang, Y., Chen, L. L., Hong, M. S., and Ueda, H.: Seasonal variation of aerosol composition at Cheju Island, Korea, *Atmos. Environ.*, 30, 2407-2416, 1996.
- Carrer, D., Roujean, J.-L., and Meurey, C.: Comparing Operational MSG/SEVIRI Land Surface Albedo Products from Land SAF with Ground Measurements and MODIS, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 48, 1714-1728, 2010.
- Chaillou, S. and Lamaze, T.: Nutrition ammoniacale des plantes. In *Assimilation de l'azote chez les plantes, aspects physiologique, biochimique et moléculaire*, Morot-Gaudry J.-F. ed., INRA éditions, 422 pp., 1997.
- Chen, Y., Randerson, J. T., Van der Werf, G. R., Morton, D. C., Mu, M. Q., and Kasibhatla, P. S.: Nitrogen deposition in tropical forests from savanna and deforestation fires, *Global Change Biology* 16, 2024-2038, 2010.
- Chestnut, L. G.: Human Health Benefits From Sulfate Reductions Under Title IV of the 1990 Clean Air Act Amendments, Final Report, U.S. EPA, Office of Atmospheric Programs, Acid Rain Division, 1995.
- Coe, H. and Gallagher, M.W.: Measurements of dry deposition of NO₂ to a Dutch heathland using the eddy correlation technique, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 118, 767-786, 1992.

- Cooke, W. F. and Wilson, J. J. N.: A global black carbon aerosol model. *J. Geophys. Res.*, 101, 19,395-19,409, 1996.
- Cooke, W. F., Koffi, B., and Grégoire, J.-M.: Seasonality of vegetation fires in Africa from remote sensing data and application to a global chemistry model, *J. Geophys. Res.*, 101, 21051–21065, 1996.
- Coulson, J. M. and Richardsons, J. F.: *Chemical engineering*, Vol. 1, pp239 Pergamon Press, Oxford, 1954.
- Cros, B., Delmas, R., Clairac, B., Loemba-Ndembi, J., and Fontan, J.: Survey of ozone concentrations in an equatorial region during the rainy season, *J. Geophys. Res.*, 92, 9772-9778, 1987.
- Cros, B., Delon, C., Affre, C., Marion, T., Druilhet, A., Perros, P. E., and Lopez, A.: Sources and sinks of ozone in savanna and forest areas during EXPRESSO: Airborne turbulent flux measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 29347–29358, 2000.
- Cros, B., Fontan, J., Minga, A., Helas, G., Nganga, D., Delmas, R., Chapuis, A., Benech, B., Druilhet, A., and Andreae, M. O.: Vertical profiles of ozone between 0 and 400 meters in and above the African equatorial Forest, *J. Geophys. Res.*, 97, 12877-12887, 1992.
- Crutzen, P.J. and Andreae, M.O.: Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science*, 250, 1669-1678, 1990.
- Crutzen, P. J., Hao, W. M., Liu, M. H., Lobert, J. M., Scharffe: Emission of CO₂ and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, our changing atmosphere, in *Proceeding of the 28th Liege International Astrophysical Colloquium*, edited by P.J. Crutzen, J.C. Gerad, and R. Zanda, University of Liege, Cointe-Ougree, Belgium, 449-472, 1990.
- Cruz, L. P. S., Campos, V. P., Silva, A. M. C., and Tavares, T. M.: A field evaluation of a SO₂ passive sampler in tropical industrial and urban air, *Atmos. Environ.*, 38, 6425-6429, 2004.
- Dabney, S. E.: Apparent deposition velocity and compensation point of ammonia inferred from gradient measurements above alfalfa, *Atmos. Environ.*, 24A, 2655-2666, 1990.
- Davidson, E. A., Vitousek, P. M., Matson, P. A., Riley, R., Gaercia-Mendez, G., and Maass, J. M.: Soil emissions of nitric oxide in a seasonally dry tropical forest of Mexico, *J. Geophys. Res.*, 96, 15439–15445, 1991.
- Davidson, E. A.: Pulses of nitric oxide and nitrous oxide flux following wetting of dry soil: An assessment of probable sources and importance relative to annual fluxes, *Ecol. Bull.*, 42, 149– 155, 1992.
- Debaje, S. B., Jeyakumar, S. J., Ganesan, K., Jadhav, D. B., and Seetaramayya, P.: Surface ozone measurements at tropical rural coastal station Tranquebar, India, *Atmos. Environ.*, 37, 4911-4916, 2003.
- Delany, A.C. and Davies, T.D.: Dry deposition of NO_x to grass in rural East Anglia, *Atmospheric Environment*, 17, 1391-1394, 1983.
- Delmas, R. A., Lacaux, J. P., Menaut, J. C., Abbadie, L., Le Roux, X., Helas, G., and Lobert, G. : Nitrogen compound emission from biomass burning in tropical African savanna, FOS/DECAFE 91 Experiment (Lamto, Ivory Coast), *J. Atmos. Chem.*, 22, 175-194, 1995.
- Delmas, R. A., Loudjani, P., Podaire, A. and Menaut, J-C.: Biomass burning in Africa: an assessment of annually burnt biomass, in *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic*

- and Biospheric Implications*, edited by J.S. Levine, pp. 126-133, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.
- Delmas, R: Contribution à l'étude des forêts équatoriales comme sources naturelles de dérivés soufrés atmosphériques, Thèse, Université Paul Sabatier, Toulouse, France, 1980.
- Delmas, R., Mégie, G., Peuch, V.-H. : Physique et chimie de l'atmosphère, Collection Echelles, Edition Belin, 640 pp., 2005.
- Delon, C., Serça, D., Boissard, C., Dupont, R., Dutot, A., Laville, de Rosnay, P., and Delmas, R.: Soil NO emissions modelling using artificial neural network, *Tellus B*, 59B, 502–513, 2007.
- Delon, C., Reeves, C. E., Stewart, D. J., Serca, D., Dupont, R., Mari, C., Chaboreau, J.-P., and Tulet, P.: Biogenic nitrogen oxide emissions from soils – impact on NO_x and ozone over West Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Experiment): modelling study, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2351–2363, 2008.
- Delon, C., Galy-Lacaux, C., Boone, A., Lioussé, C., Serça, D., Adon, M., Diop, B., Akpo, A., Lavenu, F., Mougin, E., and Timouk, F.: Atmospheric nitrogen budget in Sahelian dry savannas, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 2691-2708, doi:10.5194/acp-10-2691-2010, 2010.
- Delon, C., Galy-Lacaux, C., Adon, M., Lioussé, C., Serça, D., Diop, B., and Akpo, A.: Nitrogen compounds emission and deposition in West African ecosystems: comparison between wet and dry savanna, *Biogeosciences Discuss.*, 8, 7221-7256, doi:10.5194/bgd-8-7221-2011, 2011.
- Dentener, F. J., Carmichael, G. R., Zhang, Y., Lelieveld, Y. J., and Crutzen, P. J.: Role of mineral aerosols as a reactive surface in the global troposphere, *J. Geophys. Res.*, 101, 22869–22889, 1996.
- Dentener, F., Drevet, J., Lamarque, J.F., Bey, I., Eickhout, B., Fiore, A.M., Hauglustaine, D., Horowitz, L.W., Krol, M., Kulshrestha, U.C., Lawrence, M., Galy-Lacaux, C., Rast, S., Shindell, D., Stevenson, D., Noije, T.V., Atherton, C., Bell, N., Bergman, D., Butler, T., Cofala, J., Collins, B., Doherty, R., Ellingsen, K., Galloway, J., Gauss, M., Montanaro, V., Müller, J.F., Pitari, G., Rodriguez, J., Sanderson, M., Solomon, F., Strahan, S., Schultz, M., Sudo, K., Szopa, S., Wild, O.: Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: a multimodel evaluation, *Global Biogeochemical Cycles*, 20, GB4003, doi:10.1029/2005GB002672, 2006.
- Dentener, F.J. and Crutzen, P.J.: A three-dimensional model of the global ammonia cycle, *J. Atmos. Chem.*, 19,331-369, 1994.
- Desqueyroux, H., Pujet, J. C., Prosper, M., Squinazi, F., and Momas, I.: Short-term effects of low-level air pollution on respiratory health of adults suffering from moderate to severe asthma, *Environ. Res.*, 89, 29–37, 2002.
- Dhammapala, R.: Use of passive samplers for the sampling of Atmospheric pollutants, M. Sc. Thesis, Potchefstroom University for CHE, South Africa, 1996.
- Dollard, G. J., Atkins, D. H. F., Davies, T. J., Healy, C.: Concentrations and dry deposition velocities of nitric acid, *Nature*, 326, 481–483, 1987.
- Domerges Y. and Manganot, F.: Ecologie microbienne de sols, Masson, Paris, 1970.
- Dorman, J. L. and Sellers, P. J.: A global climatology of albedo, roughness length and stomatal resistance for atmospheric general circulation models as represented by the simple biosphere model (SiB), *J. Appl. Meteor.*, 28, 833–855, 1989.

- Dorsey, J. R., Duyzer, J. H., Gallagher, M. W., Coe, H., Pilegaard, K., Weststrate, J. H., Jensen, N. O., and Walton, S.: Oxidized nitrogen and ozone interaction with forests. I: Experimental observations and analysis of exchange with Douglas fir, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 130, 1941–1955, doi:10.1256/qj.03.124, 2004.
- Ducoudré, N., Laval, K., and Perrier, A.: SECHIBA, a New Set of Parameterizations of the Hydrologic Exchanges at the Land-Atmosphere Interface within the LMD Atmospheric General Circulation Model, *American Meteorological Society*, 6, 248–273, 1993.
- Duyzer, J.: Dry deposition of ammonia and ammonium aerosols over heathland, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 99, 18757–18763, 1994.
- Duyzer, J. H., Verhagen, H. L. M., Weststrate, J. H., Bosveld, F. C.: Measurement of the dry deposition flux of NH₃ on to coniferous forest., *Environ. Pollut.*, 75, 3–13, 1992.
- Erismán, J. W., De Leeuw, F. A. A. M., Van Aalst, and R. M.: Deposition of the most acidifying components in the Netherlands during the period 1980–1986, *Atmospheric Environment*, 23, 1051–1062, 1989.
- Erismán, J. W. and Wyers, G. P.: Continuous measurements of surface exchange of SO₂ and NH₃: implications for their possible interaction in the deposition process, *Atmos. Environ.*, 27, 1937–1949, 1993.
- Erismán, J. W., Verluís, A. H., Verplanke, T. A. J. W., de Haan, D., Anink, D., van Elzakker, B. G., Mennen, M. G., and van Aalst, R. M.: Monitoring the dry deposition of SO₂ in the Netherlands: results for grassland and heather vegetation, *Atmos. Environ.*, 27A, 1153–1161, 1993a.
- Erismán, J. W., Mennen, M. G., Hogenkamp, J. Kemkers, E., Goedhart, D., van Pul, A., Boermans, J., Duyzer, J., and Wyers, P.: Dry deposition measurements of SO₂ over the Speulder forest, estimation of a surface resistance parametrization, in: *Air Pollution Report*, edited by: G. Angeletti, C. Pio and J. Slanina, CEC, Brussels, Belgium, 1993b.
- Erismán, J.W.: Evaluation of a surface resistance parameterization of sulphur dioxide, *Atmospheric Environment*, 28, 2583–2594, 1994.
- Erismán, J. W., van Elzakker, B. G., Mennen, M. G., Hogenkamp, J., Zwart, E., van den Beld, L., Rømer, F. G., Bobbink, R., Heil, G., Raessen, M., Duyzer, J. H., Verhage, H., Wyers, G. P., Otjes, R. P., and Mols, J. J.: The Elspeetsche Veld experiment on surface exchange of trace gases: Summary of results, *Atmos. Environ.*, 28, 487–496, 1994a.
- Erismán, J. W., Van Pul, A., and Wyers, G. P.: Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone, *Atmos. Environ.*, 28, 2595–2607, 1994b.
- Erismán, J. W., Mennen, M. G., Fowler, D., Flechard, C. R., Spindler, G., Grüner, A., Duyzer, J. H., Ruigrok, W., and Wyers, G. P.: Towards development of a deposition monitoring network for air pollution in Europe, Report n° 722108015, RIVM, The Netherlands, <http://rivm.openrepository.com/rivm/bitstream/10029/10432/1/722108015.pdf>, 1996.
- EU: Council Directive 1999/30/EC relating to limit values for sulfur dioxide, nitrogen dioxide and oxides of nitrogen, particulate matter and lead in ambient air, *Official Journal of European communities* L163/41, 1999.
- Eugster, W. and Hersterberg, R.: Transfer resistances of NO₂ determined from eddy correlation flux measurements over a litter meadow at a rural site on the Swiss plateau, *Atmos. Environ.*, 30 (8), 1247–1254, 1996.

- Fan, S. M., Wofsy, S. C., Bakwin, P. S., Jacob, D. J., and Fitzjarrald, D. R.: Atmosphere-biosphere exchange of CO₂ and O₃ in the central Amazon forest, *J. Geophys. Res.*, 95(D10), 16 851–16 864, 1990.
- FAO-UNESCO: Soil map of the world, vol VI: Africa, 299pp, 1977.
- Fensholt, R., Sandholt, I., and Rasmussen, M. S.: Evaluation of MODIS LAI, fAPAR and the relation between fAPAR and NDVI in a semi-arid environment using in situ-measurements, *Remote Sensing of Environment*, 91, 490-507, 2004.
- Ferm, M., and Rodhe, H.: Measurements of air concentrations of SO₂, NO₂ and NH₃ at rural and remote sites in Asia, *J. Atmos. Chem.*, 27, 17-29, 1997.
- Ferm, M., De Santis, F., and Varotsos, C.: Nitric acid measurements in connection with corrosion studies, *Atmos. Environ.*, 39, 6664–6672, 2005.
- Ferm, M., Lindskog, A., Svanberg, P.-A., and Boström, C.-A.: New measurement technique for air pollutants (in Swedish), *Kemisk Tidskrift* 1, 30-32, 1994.
- Ferm, M.: A Na₂CO₃ coated denuder and filter for determination of gaseous HNO₃ and particulate NO₃⁻ in the atmosphere, *Atmos. Environ.*, 20, 1193-1201, 1986.
- Ferm, M.: Further developments of diffusional sampler for NO₂, IVL-L86/180, 11pp, Swedish Environmental Research Institute, 1986.
- Ferm, M.: A sensitive Diffusional Sampler. IVL publication B – 1020, Swedish Environmental Research Institute, Box 47086, 40258 Gotebory, Sweden, 1–12, 1991.
- Ferm, M.: The theories behind diffusive sampling. Proceedings from the International Conference on Measuring Air Pollutants by Diffusive Sampling, Montpellier, France, 26-28 September 2001, pp. 31-40, 2001.
- Finkelstein, P. L., Ellestad, T. G., Clarke, J. F., Meyers, T. P., Schwede, D. B., Hebert, E. O., and Neal, J. A.: Ozone and sulfur dioxide dry deposition to forests: Observations and model evaluation, *Journal of Geophysical Research*, 105 (D12), 13,365-15,377, 2000.
- Fischer, G., Van Velthuisen, H., Sha, M., and Nachtergaele, F.: Global agro-ecological assessment for agriculture in the 21st century: Methodology and results, *International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Austria, Food and Agricultural Organization*, Rome, Italy, CD-ROM, 2002.
- Flechard, C. R.: Turbulent exchange of ammonia above vegetation, Nottingham University, 231 pp., 1998.
- Flechard, C. R., Fowler, D., Sutton, M. A., and Cape, J. N.: A dynamic chemical model of bi-directional ammonia exchange between semi-natural vegetation and the atmosphere, *Q. J. R. Meteor. Soc.*, 125, 2611–2641, 1999.
- Flechard, C. R., Nemitz, E., Smith, R. I., Fowler, D., Vermeulen, A. T., Bleeker, A., Erisman, J. W., Simpson, D., Zhang, L., Tang, Y. S., and Sutton, M. A: Dry deposition of reactive nitrogen to European ecosystems: a comparison of inferential models across the NitroEurope network, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2703–2728, 2011.
- Fowler, D., Duyzer, J. H., and Baldocchi, D. D.: Inputs of trace gases, particles and cloud droplets to terrestrial surfaces, *Proceedings of the Royal Society of Edinburgh*, **97B**: 35-59, 1991.
- Fowler, D., Pilegaard, K., Sutton, M.A., Ambus, P., Raivonen, M., Duyzer, J., Simpson, D., Fagerli, H., Schjoerring, J.K., Neftel, A., Burkhardt, J., Daemmgen, U., Neiyrink, J., Personne, E., Wichink-Kruit, R., Butterbach-Bahl, K., Flechard, C., Tuovinen, J.P., Coyle,

- M., Gerosa, G., Loubet, B., Altimir, N., Gruenhage, L., Ammann, C., Cieslik, S., Paoletti, E., Mikkelsen, T.N., Ro-Poulsen, H., Cellier, P., Cape, J.N., Horvath, L., Loreto, F., Niinemets, U., Palmer, P.I., Rinne, J., Misztal, P., Nemitz, E., Nilsson, D., Pryor, S., Gallagher, M.W., Vesala, T., Skiba, U., Brüeggemann, N., Zechmeister-Boltenstern, S., Williams, J., O'Dowd, C., Facchini, M.C., de Leeuw, G., Flossman, A., Chaumerliac, N., Erisman, J.W.: Atmospheric composition change: ecosystems and atmosphere exchange 43, 5192-5263, 2009.
- Frost, P., Medina, E., Menaut, J. C., Solbrig, O., Swift, M., and Walker, B.: Responses of savannas to stress and disturbance, *Biology International*, 10, 1-82, 1986.
- Galanter, M., Levy II, H., and Carmichael, G. R.: Impacts of biomass burning on tropospheric CO, NO_x, and O₃, *J. Geophys. Res.*, 105, 6633-6653, 2000.
- Galy-Lacaux, C., and Modi, A. I.: Precipitation chemistry in the Sahelian Savanna of Niger, Africa, *J. Atmos. Chem.*, 30, 319-334, 1998.
- Galy-Lacaux, C., Carmichael, G. R., Song, C. H., Lacaux, J. P., and Modi, I.: Heterogenous processes involving nitrogenous compounds and Saharan dust inferred from measurements and model calculations Region, *J. Geophys. Res.*, 106, 12559-12578, 2001.
- Galy-Lacaux, C., Laouali, D., Descroix, L., Gobron, N., and Liousse, C.: Long term precipitation chemistry and wet deposition in a remote dry savanna site in Africa (Niger), *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1579-1595, 2009.
- Geiger B., Meurey, C., Lajas, D., Franchist'guy, L., Carrer, D., and Roujean, J.-L.: Near real-time provision of downwelling shortwave radiation estimates derived from satellite observations, *Meteor. Appl.*, 15, 411-420, 2008.
- Galloway, J. N. and Cowling, E. B.: Reactive nitrogen and the world: 200 years of change, *Ambio*, 31, 64-71, 2002.
- Galloway, J. N., Aber, J. D., Erisman, J. W., Seitzinger, S. P., Howarth, R. W., Cowling, E. B., and Cosby, B. J.: The nitrogen cascade, *Bioscience* 53, 341-356, 2003.
- Galloway, J. N., Townsend, A. R., Erisman, J. W., Bekunda, M., Cai, Z., Freney, J. R., Martinelli, L. A., Seitzinger, S. P., and Sutton, M. A.: Transformation of the nitrogen cycle: recent trends, questions and potential solutions, *Science*, 320, 889-892, 2008.
- Ganzeveld, L. and Lelieveld, J.: Dry deposition parameterization in a chemistry general circulation model and its influence on the distribution of reactive trace gases, *J. Geophys. Res.*, 100, 20 999-21 012, 1995.
- Gao, W., Wesely, M. L., and Doskey, P. V.: Numerical modeling of the turbulent diffusion and chemistry of NO_x, O₃, isoprene, and other reactive trace gases in and above a forest canopy, *J. Geophys. Res.*, 98, 18 339-18 353, 1993.
- Gao, W., Wesely, M. L., Cook, D. R., Martin, T. J.: Eddy correlation measurements of NO, NO₂, and O₃ fluxes, *Proceedings of an International Specialty Conference, Measurement of Toxic and Related Air Pollutants*, Air Waste Management Association, Pittsburgh, PA, pp.146-150, 1996.
- Garland, J. A.: The dry deposition of sulphur dioxide to land and water surfaces, *Proceedings Royal Society London*, A 354, 245-268, 1977.
- Gasche, R. and Papen, H.: A 3-year continuous record of nitrogen trace gas fluxes from untreated and limed soil of a N-saturated spruce and beech forest ecosystem in Germany 2. NO and NO₂ fluxes, *J. Geophys. Res.* 104, 18505-18520, 1999.

- Gautier, L.: Contact forêt-savane en Côte d'Ivoire centrale : évolution de la surface forestière de la réserve de Lamto (sud de V-Baoulé), *Candoella* 45, 627-641, 1990.
- Giglio, L., van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Collatz, G. J., and Kasibhatla, P.: Global estimation of burned area using MODIS active fire observations, *Atmos. Chem. Phys.* 6, 957-974, 2006.
- Goulding, K. W. T., Bailey, N. J., Bradbury, N. J.: Conference information: 3rd new phytologist symposium on major biological issues resulting from anthropogenic disturbance of the nitrogen cycle, *New Phytologist*, 139, 48-49, 1997..
- Graedel, T. E. and Crutzen, P. J.: *Atmospheric change: An Earth System Perspective*, W. H. Freeman and Company, New York, 446pp, 1993.
- Granier, C., Bessagnet, B., Bond, T., D'Angiola, A., Van der Gon, H. D., Frost, G., Heil, A., Kaiser, J. W., Kinne, S., Klimont, Z., Kloster, S., Lamarque, J.-F., Lioussé, C., Masui, T., Meleux, F., Mieville, A., Ohara, T., Raut, J.-C., Riahi, K., Schultz, M., Smith, S. J., Thompson, A., van Aardenne, J., Van der Werf, G. R., and van Vuuren, D. P.: Evolution of anthropogenic and biomass burning emissions at global and regional scales during the 1980-2010 period, Submitted to *Climatic Change*, 2010.
- Grosjean, D. and Hisham, M.W.M.: A passive sampler for atmospheric ozone, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 42, 169-173, 1992.
- Grosjean, D. and Williams II, E. L.: Field tests of a passive sampler for atmospheric ozone at California mountain forest locations, *Atmos. Environ.*, 26A, 1407-1411, 1992.
- Grosjean, D., Williams II, E.L., Grosjean, E.: Monitoring ambient ozone with a network of passive samplers: a feasibility study, *Environmental Pollution* 88, 267-273, 1995.
- Grosjean, D., Williams, E.L., Grosjean, E.: Passive sampling of atmospheric photochemical oxidants, *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 49, 59-72, 1992.
- Gupta, A., Kumar, R., Kumari, K. M., and Srivastava, S.S.: Measurement of NO₂, HNO₃, NH₃ and SO₂ and related particulate matter at a rural site in Rampur, India, *Atmos. Environ.*, 37, 4837-4846, 2003.
- Gusten, H., Heinrich, G., Monnich, E., Sprung, D., Weppner, J., Ramadan, A., and Ezz El-Din, M.: On-line measurements of ozone surface fluxes: Part II. Surface level ozone fluxes onto the Sahara Desert, *Atmospheric Environment*, 30, 911-918, 1996.
- Guyot, G.: *Climatologie de l'environnement, Cours et exercices corrigés*, Dunod, Paris, 525 pp., 1999.
- Haddad, N. M., Haarstad, J., Tilman, D.: The effects of long-term nitrogen loading on grassland insect communities, *Oecologia*, 124, 73-84, 2000.
- Hanson, P. J. and Lindberg, S. E.: Dry deposition of reactive nitrogen compounds: a review of leaf, canopy and non-foliar measurements, *Atmos. Environ.*, 25A, 8, 1615-1634, 1991.
- Hanson, P. J., Rott, K., Taylor Jr., G. E., Gunderson, C. A., Lindberg, S. E., and Ross-Todd, B. M.: NO₂ deposition to elements representative of a forest landscape, *Atmospheric Environment*, 23, 1783-1794, 1989.
- Hansen, B., Nomberg, P., and Rasmussen, R. K.: Atmospheric ammonia exchange on a heathland in Denmark, *Atmos. Environ.*, 32 (3), 461-464, 1998.
- Hansen, J., Sato, M., Nazarenko, L., Ruedy, R., Lacis, A., Koch, D., Tegen, I., Hall, T., Shindell, D., Santer, B., Stone, P., Novakov, T., Thomason, L., Wang, R., Wang, Y., Jacob, D., Hollandsworth, S., Bishop, L., Logan, J., Thompson, A., Stolarski, R., Lean, J.,

- Willson, R., Levitus, S., Antonov, J., Rayner, N., Parker, D., and Christy, J.: Climate forcings in Goddard Institute for Space Studies SI2000 simulations, *J. Geophys. Res.* 107, 4347, doi: 10.1029/2001JD001143, 2002.
- Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R., Lacis, A., and Oinas, V.: Global warming in the twenty-first century: an alternative scenario, *Proc. Natl. Acad. Sci.* 97, pp. 9875-9880. doi:10.1073/pnas.170278997, 2000.
- Hao, W. M. and Liu, M.-H.: Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, 8, 495–503, 1994.
- Harris, G. W., Wienhold, F. G., and Zenker, T.: Airborne observations of strong biogenic NO_x emissions from the Namibian Savanna at the end of the dry season, *J. Geophys. Res.-Atmos.* 101, 23707–23711, 1996.
- Harrison, R. M., Rapsomanikis, S., and Turnbull, A.: Land–surface exchange in a chemically reactive system: surface fluxes of HNO₃, HCl and NH₃, *Atmospheric Environment*, 23, 1795–1800, 1989.
- Hicks, B. B., Baldocchi, D. D., Meyers, T. P., Hosker Jr., R. P., and Matt, D. R.: A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities, *Water, Air and Soil Pollu.*, 36, 311–330, 1987.
- Hicks, B. B., Matt, D. R., McMillen, R. T., Womack, J. D., Wesely, M. L., Hart, R. L., Cook, D. R., Lindberg, S. E., de Pena, R. G., and Thomson, D. W.: A Field investigation of sulfate Fluxes to deciduous forest, *Journal of Geophysical Research*, 94, 13003-13011, 1989.
- Hirs, D. and Storvik, G.: Estimating critical load exceedance by combining the EMEP model with data from measurement stations, *Sci. Total Environ.*, 310, 163–170, 2003.
- Holland, E. A., Brasswell, B. H., Lamarque, J. F., Townsend, A., Sulzman, J., Muller, J. F., Dentener, F., Brasseur, G., Levy II, H., Penner, J. E., and Roelofs, G. J.: Variations in the predicted spatial distribution of atmospheric nitrogen deposition and their impact on carbon uptake by terrestrial ecosystems, *J. Geophys. Res.*, 102, 15849–15866, 1997.
- Horii, C. V., Munger, J. W., Wofsy, S. C., Zahniser, M., Nelson, D., and McManus, J. B.: Atmospheric reactive nitrogen concentration and flux budgets at a northeastern U.S. forest site, *Agric. For. Meteorol.*, 136, 159–174, doi:10.1016/j.agrformet.2006.03.005, 2006.
- Huebert, B.J.: Measurement of the dry deposition flux of nitric acid vapor to grassland and forest, In: Pruppacher, H.R., Semonin, R.G., Slinn, W.G.N. (Eds.), *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, Vol. 2, pp. 785-794, 1983.
- Huebert, B. J. and Robert, C. H.: The dry deposition of nitric acid to grass, *Journal of Geophysical Research* 90, 2085–2090, 1985.
- Huffman G. J., Adler, R. F., Bolvin, D. T., Gu, G., Nelkin, E. J., Bowman, K. P., Hong, Y., Stocker, E. F., and Wolff, D. B.: The TRMM Multi-satellite Precipitation Analysis: Quasi-Global, Multi-Year, Combined-Sensor Precipitation Estimates at Fine Scale, *J. Hydrometeor.*, 8, 38–55, 2007.
- Hyer, E. J. and Reid, J. S.: baseline uncertainties in biomass burning emission models resulting from spatial error in satellite active fire location data, *Geophys. Res. Lett.*, 36 (L05802), doi :10.129/2009GL036676, 2009.

- Ito, A. and Penner, J. E.: Historical emissions of carbonaceous aerosols from biomass and fossil fuel burning for the period 1870–2000, *Global Biogeochem. Cycles*, 19, GB2028, doi:10.1029/2004GB002374, 2005.
- Ito, A., Ito, A., and Akimoto, H.: Seasonal and interannual variations in CO and BC emissions from open biomass burning in Southern Africa during 1998–2005, *Global Biogeochem. Cy.*, 21, GB2011, doi:10.1029/2006GB002848, 2007.
- Jacob, D. J., and Bakwin, P. S.: Cycling of NO_x in tropical forest canopies, in: *Microbial Production and Consumption of Greenhouse Gases: Methane, Nitrogen Oxides, and Halomethane*, edited by: J. E. Rogers and W. B. Whitman, chap. 13, pp. 237 – 253, *Am. Soc. Microbiol.*, Washington, D. C, 1991.
- Jacob, D. J. and Wofsy, S. C.: Budgets of reactive nitrogen, hydrocarbons, and ozone over the Amazon-Forest during the wet season, *J. Geophys. Res.*, 95, 16737–16754, 1990.
- Jacob, D. J., Heikes, B. G., Dickerson, R. R., Artz, R. S., and Keene, W. C.: Evidence for a seasonal transition from NO_x to hydrocarbon-limited ozone production at Shenandoah National Park, Virginia, *J. Geophys. Res.*, 100, 9315–9324, 1995.
- Jacob, D. J., Heikes, B. G., Fan, S.-M., and Logan, J.: Origin of ozone and NO_x in the tropical troposphere: A photochemical analysis of aircraft observations over south Atlantic basin, *Journal of Geophysical Research*, 101 (D19), 16421–16431, 1996.
- Jaeglé, L., Martin, R. V., Chance, K., Steinberger, L., Kurosu, T. P., Jacob, D. J., Modi, A. I., Yoboué, V., Sigha-Nkamdjou, L., and Galy-Lacaux, C.: Satellite mapping of rain-induced nitric oxide emissions from soils, *J. Geophys. Res.*, 109, doi: 10.1029/2004JD004787, 2004.
- Jaeglé, L., Steinberger, L., Martin, R.V., and Chance, K.: Global partitioning of NO_x sources using satellite observations: Relative roles of fossil fuel combustion, biomass burning and soil emissions, *Faraday Discuss.*, 130, 407–423 doi: 10.1039/b502128f, 2005.
- Janssen, L.H.J.M. and Romer, F.G.: The frequency and duration of dew occurrence over a year, *Tellus*, 43B, 408–419, 1991.
- Jarvis, P. G.: The interpretation of the variations in leaf water potential and stomatal conductance found in canopies in the field, *Philosophical Transactions of Royal Society of London Series B*, 273, 593– 610, 1976.
- Jarvis, P. G., James, G., and Landsberg, J.: *Coniferous Forest*, in *Vegetation and the Atmosphere II* (pp.439), edited by J. Monteith, pp. 171–240, Academic Press INC., London, 1976.
- Jason, E. W., Scheele, R., van Velthoven, P., Bouarar, I., Law, K., Josse, B., Peuch, V.-H., Yang, X., Pyle, J., Thouret, V., Barret, B., Lioussé, C., Hourdin, F., Szopa, S., and Cozic, A.: *Global Chemistry Simulations in the AMMA Multimodel Intercomparison Project*. American Meteorological Society. Vol 91, Issue 5; pp 611–624, 2010.
- Jin, L. Shao, M., Zeng, L., Zhao, D., and Tang, D.: Estimation of dry deposition fluxes of major inorganic species by canopy throughfall approach, *Chinese Sci. Bull.*, 51(15), 1818–1823, 2006.
- Johansson, C., and Sanhueza, E.: Emissions of NO from savannah soils during rainy season, *J. Geophys. Res.*, 93, 14193–14198, 1988.
- Johansson, C., Richter, A., Granat, L.: Dry deposition on coniferous forest of SO₂ at PPB levels, In: *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, edited by:

- Pruppacher, H.R., Semonin, R.G., and Slinn, W.G.N., Dry Deposition and Resuspension, Vol. 2, pp 775-784, 1988.
- Johansson, C., Rodhe, H., Sanhueza, E.: Emission of NO in tropical savanna and a cloud forest during the dry season, *J. Geophys. Res.*, 93, 7180-7192, 1988.
- Josipovic, M., Annegarn, H., Kneen, M., Piketh, S., and Pienaar J.: A regional passive monitoring Study of SO₂, NO₂ and Ozone in South Africa. IGACTivities Newsletter n° 36, July 2007.
- Junker C. and Liousse, C.: A Global Emission Inventory of Carbonaceous Aerosol including Fossil Fuel and Biofuel sources for the Period 1860-1997, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 1–13, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/1/2008/>, 2008.
- Kaplan, W. A., Wofsy, S. C., Keller, M., and Da Costa, J. M.: Emission of NO and deposition of O₃ in a tropical forest system, *J. Geophys. Res.*, 93, 1389–1395, 1988.
- Kaptué, T. A. T.: Cartographie des écosystèmes et paramètres biophysiques pour l'étude des flux hydriques sur le continent africain, Thèse de Doctorat, Université Toulouse III, 2010.
- Kaptué, T. A. T., Roujean, J.-L., and Faroux, S.: ECOCLIMAP-II: an ecosystem classification and land surface parameter database of Western Africa at 1 km resolution for the Africa Monsoon Multidisciplinary Analysis (AMMA) project, *Remote Sensing of Environment*, 114, 961-976, 2010.
- Kerstiens, G. and Lenzian, K. J.: Interactions between ozone and plant cuticles, *New Phytol.*, 112, 13-19, 1989.
- Kirkman, G. A., Gut, A., Ammann, C., Gatti, L. V., Cordova, A. M., Moura, M. A. L., Andreae, M. O., and Meixner, F. X.: Surface exchange of nitric oxide, nitrogen dioxide, and ozone at a pasture in Rondonia, Brazil, *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 8083, doi:10.1029/2001JD000523, 2002.
- Kramm, G., Dlugi, R., Dollard, G. J., Foken, T., Molders, N., Muller, H., Seiler, W., and Sievering, H.: On the dry deposition of ozone and reactive nitrogen species, *Atmos. Environ.*, 29(21), 3209–3231, 1995.
- Kristensen L., Lenschow, D. H., Gurarie, D., and Jensen, N. O.: A simple model for vertical transport of reactive species in the convective atmospheric boundary layer, *Bound. Lay. Meteorol.*, 134, 195–221, 2010.
- Krupa, S. V. and Legge, A. H.: Passive sampling of ambient, gaseous air pollutants: an assessment from ecological perspective, *Environmental Pollution*, 107, 31-45, 2000.
- Kulbusch, T. A., Lobert, J. M., Crutzen, P. J., Warneck, P.: Molecular nitrogen emissions from denitrification during biomass burning, *Nature*, 351, 135-137, 1991.
- Lacaux, J. P., Brustet, J. M., Delmas, R., Menaut, J. C., Abbadie, L., Bonsang, B., Cachier, H., Baudet, J. G. R., Andreae, M. O., and Helas, G.: Biomass burning in the tropical savannas of Ivory Coast: An overview of the field experiment Fire of Savannas (FOS/DECAFE 91), *J. Atmos. Chem.*, 22, 195-216, 1995.
- Lacaux, J.P., Cachier, H., and Delmas, R.: Biomass burning in Africa: An overview of its impact on atmospheric chemistry, in *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric and Climatic Importance of Vegetation Fires*, edited by P.J. Crutzen and J.G. Goldammer, pp. 159-191, Environmental Science Research Report 13, John Wiley, New York, 1993.

- Lacaux J.P., Delmas, R., Kouadio, G., Cros, B., and Andreae, M.O.: Precipitation chemistry in the Mayombe forest of equatorial Africa, *J. Geophys. Res.*, 97, 6195-6206, 1992.
- Lacaux, J. P., Tathy, J. P., and Sigha, L.: Acid wet deposition in the tropics: two case studies using DEBITS measurements, *IGACTivities Newsletter of the International Global Atmospheric Chemistry Project*, DEBITS Special Issue Nr. 2, 2003.
- Lacaux, J. P.: DEBITS activity in Africa: atmospheric deposition in northern hemisphere of tropical Africa, September 13-19, 1999, *International Global Atmospheric Chemistry (IGAC), Symposium, Bologna, Italia, 1999.*
- Langford, A. O. and Fehsenfeld, F. C.: Natural vegetation as a source or sink for atmospheric ammonia: a case study, *Science*, 255, 581-583, 1992.
- Langner, J. and Rhodes, H.: A global three-dimensional model of the tropospheric sulfur cycle, *J. Atmos. Chem.*, 13, 225-263, 1991.
- Laouali, D., Galy-Lacaux, C., Diop, B., Delon, C., Orange, D., Lacaux, J. P., Akpo, A., Lavenu, F., Gardrat, E., and Castera, P.: Long term monitoring of precipitation chemical composition and wet deposition over three Sahelian savannas. Soumis à ACPD, 2010.
- Laville, P., Hénault, C., Gabrielle, B., and Serça, D.: Measurement and modelling of NO fluxes over maize and wheat crops during their growing seasons: effect of crop management, *Nutr. Cycl. Agroecosyst.* 72, 159-171, 2005.
- Le Barbe, L., Lebel, T., and Tapsoba, T.: Rainfall variability in West Africa during the years 1950-90, *Journal of Climate*, 15, 187-202, 2002.
- Lebel T., Parker, D. J., Bourles, B., Flamant, C., Marticorena, B., Peugeot, C., Gaye, A., Haywood, J., Mougín, E., Polcher, J., Redelsperger, J.-L. and Thorncroft, C. D.: The AMMA field campaigns: Multiscale and multidisciplinary observations in the West African region. In press in *BAMS*, Volume 88, Issue 3, 2007.
- Lee, H. S., Kang, C.-M., Kang, B.-W., and Kim, H.-K.: Seasonal variations of acidic air pollutants in Seoul, South Korea, *Atmos. Environ.*, 33, 3143-3152, 1999.
- Le Roux, X., Abbadie, L., Lensi, R., and Serça, D.: Emission of nitrogen monoxide from African tropical ecosystems: control of emission by soil characteristics in humid and dry savannas of West Africa, *J. Geophys. Res.*, 100, 23133-23142, 1995.
- Le Roux, X.: Etude et modélisation des échanges d'eau et d'énergie sol-végétation-atmosphère dans une savane humide (Lamto, Côte d'Ivoire), Thèse de Doctorat, Université Paris VI, 203 p, 1995.
- Le Roux, X., Gauthier, H., Bégué, A., and Sinoquet, H.: Radiation absorption and use by humid savanna grassland: assessment using remote sensing and modeling, *Agricultural and Forest Meteorology*, 85, 117-132, 1997.
- Levine, J. S., Winstead, E. L., Parson, D. A. B., Scholes, M. C., Scholes, R. J., Cofer III, W. R., Cahoon Jr., D. R., and Sebacher, D. I.: Biogenic soil emissions of nitric oxide (NO) and nitrous oxide (N₂O) from savannas in South Africa: The impact of wetting and burning, *J. Geophys. Res.*, 101, 23689-23697, 1996.
- Lindberg, S. E., Bredemeier, M., Schaefer, D. A., and Qi, L.: Atmospheric concentration and deposition of N compounds and major ions during the growing season in conifer forests in the United States and West Germany, *Atmos. Environ.*, 24A, 2207-2220, 1990.

- Lippman, M.: Health effects of tropospheric ozone: review of recent research findings and their implications to ambient air quality standards, *Journal of Exposure Anal. Environment Epidemiol* 3, 103-128, 1993.
- Liousse, C., Andreae, M. O., Artaxo, P., Barbosa, P., Cachier, H., Gregoire, J. M., Hobbs, P., Lavoue, D., Mouillot, F., Penner, J. E., and Scholes, M.: Deriving Global Quantitative Estimates for Spatial and Temporal Distributions of Biomass Burning Emissions, In: *Emissions of Atmospheric Trace Compounds*, ed: Granier C., Artaxo P. and Reeves C., 544, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 2004.
- Liousse, C., Guillaume, B., Gregoire, J. M, Mallet, M., Galy, C., Pont, V., Akpo, A., Bedou, M., Castera, P., Dungall, L., Gardrat, E., Granier, C., Konare, A., Malavelle, F., Mariscal, A., Mieville, A., Rosset, R., Serca, D., Solmon, F., Tummon, F., Assamoi, E.-M., Yoboue, V., and Van Velthoven, P.: Updated African biomass burning emission inventories in the frame of the AMMA-IDAF program, with an evaluation of combustion aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(3), 7347-7382, 2010.
- Liousse, C., Penner, J. E., Chuang, C., Walton, J. J., Eddleman, H., and Cachier, H.: A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols, *J. Geophys. Res.*, 101(D14), 432, 1996.
- Liu, S. C., Trainer, M., Fehsenfeld, F. C., Parrish, D. D., Williams, E. J., Fahey, D. W., Hubler, G., and Murphy, P. C.: Ozone production in the rural troposphere and the implications for regional and global ozone distributions, *J. Geophys. Res.*, 92, 4191-4207, 1987.
- Livre blanc AMMA : <http://amma.mediasfrance.org/france/index>, 2004.
- Lobert, J. M., Scharffe, D. H., Hao, W. M., and Crutzen, P. J.: Importance of biomass burning in the atmospheric budgets of nitrogen containing gases, *Nature*, 346, 552-524, 1990.
- Logan, J.A.,: Nitrogen oxides in the troposphere: global and regional budgets, *J. Geophys. Res.*, 88, 10785-10807, 1983.
- Loubet, B.: Modélisation du dépôt sec d'ammoniac atmosphérique à proximité des sources, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier, 330 p., 2000.
- Ludwig, J., Meixner, F. X., Vogel, B., and Forstner, J.: Soil-air exchange of nitric oxide: An overview of processes, environmental factors, and modelling studies, *Biogeochemistry*, 52, 225-257, 2001.
- Macdonald, B. C. T., Denmead, O. T., Ian White, I., Michael, D., and Melville, M. D.: Natural sulfur dioxide emissions from sulfuric soils, *Atmos. Environ.*, 38, 1473-1480, 2004.
- Marenco, A., Medale, J. C., and Prieur, S.: Study of tropospheric ozone in the tropical belt (Africa, America) from STRATOZ and TROPOZ campaigns, *Atmos. Environ.*, 24, 2823-2843, 1990.
- Martins, J. J., Dhammapala, R. S., Lachmann, G., Galy-Lacaux, C., Pienaar, J. J.: Long-term measurements of sulphur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in southern Africa using passive samplers, *S. Afr. J. Sci.*, 103(7-8), 336-342, 2007.
- Marufu, L., Dentener, F., Ielieveld, J., Andreae, M. O., and Helas, G.: Photochemistry of the african troposphere : Influence of biomass-burning emissions, *J. Geophys. Res.*, 105 (D11), 14,513-14,530, 2000.

- Massad, R. S., E. Nemitz, and M. A. Sutton (2010a), Review and parameterization of bi-directional ammonia exchange between vegetation and the atmosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10359–10386, doi:10.5194/acp-10-10359-2010, 2010
- Massman, W.J.: Partitioning ozone fluxes to sparse grass and soil and the inferred resistances to dry deposition, *Atmospheric Environment*, 27A, 167-174, 1993.
- Massman, W., and Van Dijken, A.: Water vapor transfer from a vegetated surface: a numerical study of bulk transfer coefficients and canopy resistances, *Boundary-Layer Meteorology*, 49, 295-307, 1989.
- Massman, W. J., Pederson, J., Delany, A., Grantz, D., den Hartog, G., Neumann, H. H., Oncley, S. P., Pearson, R., and Shaw, R. H.: An evaluation of the Regional Acid Deposition Model surface module for ozone uptake at three sites in the San Joaquin Valley of California, *J. Geophys. Res.*, 99, 8281–8294, 1994.
- Matson, P. A., McDowell, W. H., Townsend, A. R., and Vitousek, P. M.: The globalization of N deposition: ecosystem consequences in tropical environments, *Biogeochemistry*, 46, 67–83, 1999.
- Matsuda, K., Watanabe, I., Wingpud, V., Theramongkol, P., Khummongkol, P., Wangwongwatana, S., and Totsuka, T.: Ozone dry deposition above a tropical forest in the dry season in northern Thailand, *Atmos. Environ.*, 39, 2571–2577, 2005.
- Matsuda, K., Watanabe, I., Wingpud, V., Theramongkol, P., and Ohizumi, T.: Deposition velocity of O₃ and SO₂ in the dry and wet season above a tropical forest in northern Thailand, *Atmos. Environ.*, 40, 7557-7564, 2006.
- Matt, D. R., and Meyers, T. P.: On the use of the inferential technique to estimate dry deposition of SO₂, *Atmos. Environ.*, 27, 493– 501, 1993.
- Mauzerall, D. L., and Wang, X. P.: Protecting agricultural crops from the effects of tropospheric ozone exposure: Reconciling science and standard setting in the United States, Europe, and Asia, *Ann. Rev. Energy Environ.*, 26, 237–268, 2001.
- Mayaux, P., Bartholomé, E., Fritz, S., and Belward, A.: A new land cover map of Africa for the year 2000, *Journal of Biogeography*, 31, 861-877, 2004.
- McCalley, C. K. and Sparks, J. P.: Controls over nitric oxide and ammonia emissions from Mojave Desert soils, *Oecologia*, 156, 871-881, 2008.
- Mc Granham, G. and Murray, F.: air pollution and health in rapidly developing countries, edition SEI Earthscan, 1-227, ISBN 1-85383-985-X, 2003.
- Menaut, J. C. and César, J.: Structure and primary productivity of Lamto savannas, Ivory Coast, *Ecology*, 60, 1197-1210, 1979.
- Menaut, J. C., Abbadie, L., Levanu, F., Loudjani, P., and Podaire, A.: Biomass burning in West African Savannas, in: *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, edited by :J.S. Levine, pp. 133-142, MIT Press, Cambridge, Mass, 1991.
- Menaut J. C.: The vegetation of African savannas, In: *Tropical savannas*, edited by: F. Boulière, Elsevier, Amsterdam, 109-149, 1983.
- Meng, Z.-Y., Xu, X.-B., Wang, T., Zhang, X.-Y., Yu, X.-L., Wang, S.-F., Lin, W.-L., Chen, Y.-Z., Jiang, Y.-A., and An, X.-Q.: Ambient sulfur dioxide, nitrogen dioxide, and ammonia at ten background and rural sites in China during 2007-2008, *Atmos. Environ.*, 44,2625-2631, 2010.

- Meyers, T.P., Finkelstein, P., Clarke, J., Ellestad, T.G., and Sims, P.F.: A multilayer model for inferring dry deposition using standard meteorological measurements, *Journal of Geophysical Research*, 103, 22645-22661, 1998.
- Michel, C., Liousse, C., Gregoire, J.-M., Tansey, K., Carmichael, G. R., and Woo, J.- H.: Biomass burning emission inventory from burnt area data given by the SPOT-VEGETATION system in the frame of TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *J. Geophys. Res.*, 110, D09304, doi:10.1029/2004JD005461, 2005.
- Mieville, A., Granier, C., Liousse, C., Guillaume, B., Mouillot, F., Lamarque, J.-F., Gregoire, J.-M., and Petron, G. : Emissions of gases and particles from biomass burning using satellite data and an historical reconstruction, *Atmos. Environ.*, 44, 1469-1477, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.01.011, 2010.
- Miller, D. P.: Ion chromatographic analysis of Palmes tube for nitrite, *Atmospheric Environment*, 18, 891-892, 1984.
- Mphopya, J. N., Galy-Lacaux, C., Lacaux, J. P., Held, G., Pienaar, J. J.: Precipitation Chemistry and Wet Deposition in Kruger National Park, South Africa, *J. Atmos. Chem.*, 53, 169–183, 2006.
- Mphopya, J. N., Pienaar, J. J., Galy-Lacaux, C., Held, G., and Turner, C. R.: Precipitation Chemistry in Semi-Arid Areas of Southern Africa: A Case Study of a Rural and an industrial Site, *J. Atmos. Chem.*, 47, 1–24, 2004.
- Modi, A. I., Lacaux, J. P., Labroue, L., and Baudet, J. G. R.: Chimie des aérosols et des pluies dans la savane semi-aride du Niger pendant la saison humide 1989, *Sécheresse*, 6, 331–335, 1995.
- Morselli, L., Bernardi, E., Passarini, F., and Olivieri, P.: Critical loads and exceedences of Cd and Pb in a Northern Italy area, *J. Phys. IV*, 107, 895–898, 2003a.
- Morselli, L., Francaviglia, R., Lepore, L., Merolli, S., Passarini, F., Bernardi, E., and Mezzogori, R.: The atmospheric monitoring in a protected area, *Ann. Chim.-Rome*, 93, 117–127, 2003b.
- Mortimer, K. M., Neas, L. M., Dockery, D. W., Redline, S., and Tager, I. B.: The effect of air pollution on inner-city children with asthma, *Eur. Respiratory J.*, 19, 699–705, 2002.
- Mougin, E., Hiernaux, P., Kergoat, L., Grippa, M., De Rosnay, P., Timouk, F., Le Dantec, V., Demarez, V., Arjounin, M., Lavenue, F., Soumaguel, N., Ceschia, E., Mougnot, B., Baup, F., Frappart, F., Frison, P. L., Gardelle, J., Gruhier, C., Jarlan, L., Mangiarotti, S., Sanou, B., Tracol, Y., Guichard, F., Trichon, V., Diarra, L., Soumaré, A., Koité, M., Dembélé, F., Lloyd, C., Hanan, N. P., Damesin, C., Delon, C., Serça, D., Galy-Lacaux, C., Seghiéri, J., Becerra, S., Dia, H., Gangneron, F., and Mazzega, P.: The AMMA-CATCH Gourma observatory site in Mali: Relating climatic variations to changes in vegetation, surface hydrology, fluxes and natural resources, *Journal of Hydrology*, AMMA-CATCH Special issue, 375, 14-33, 10.1016/j.jhydrol.2009.06.045, 2009.
- Myneni, R. B., Knyazikhin, Y., Zhang, Y., Tian, Y., Wang, Y., Lotsch, A. et al.: Modis Leaf Area Index (LAI) and Fraction of Photosynthetically Active Radiation Absorbed by Vegetation (fPAR) Product, *Algorithm theoretical basis document*, Boston University, Boston, USA, 126 pp, 1999.

- National Research Council (NRC): Committee on Tropospheric Ozone Formation and Measurement. Rethinking the Ozone Problem in Urban and Regional Air Pollution, National Academy Press, 1991.
- Naja, M., and Lal, S.: Surface ozone and precursor gases at Gadanki (13.5°N, 79.2°E), a tropical rural site in India, *J. Geophys. Res.*, 107, 4197, doi: 10.1029/2001JD000357, 2002.
- Nemitz, E., Sutton, M. A., Schjoerring, J. K., Husted, S., and Wyers, G. P.: Resistance modelling of ammonia exchange over oilseed rape, *Agr. For. Meteorol.*, 105, 405-425, 2000.
- Neubert, A., Kley, D., and Wildt, J.: Uptake of NO, NO₂, and O₃ by sunflower (*Helianthus annuus L*) and tobacco plants (*Nicotiana tabacum L*): Dependence on stomatal conductivity, *Atmos. Environ.*, 27A, 2137-2145, 1993.
- Nicholson, S. E.: The intensity, location and structure of the tropical rain belt over West Africa as factors in interannual variability, *International Journal of Climatology*, 28, 1775-1785, 2008.
- Nilsson, J. and Grennfelt, P.: Critical loads for sulphur and nitrogen, Miljørapport 15, Nordic Council of Ministers, Copenhagen, 1988.
- Noilhan, J. and Mahfouf, J.-F.: The ISBA land surface parameterization scheme, *Glob. Planet. Change*, 13, 145-159, 1996.
- Norman, J.M. Simulation of microclimates, In: *Biometeorology in Integrated Pest Management*, edited by: J.L Hatfield, I.J Thompson, Academic Press, New York, pp. 65-99, 1982.
- Otter, L. B., Yang, W. X., Scholes, M. C., and Meixner, F.X.: Nitric oxide emissions from a southern African savanna, *J. Geophys. Res.*, 104 (D15), 18, 471-18, 485, 1999.
- Padro, J.: Observed characteristics of the dry deposition velocity of O₃ and SO₂ above a wet deciduous forest, *Science of the Total Environment*, 146/147, 395-400, 1994.
- Padro, J.: Summary of ozone dry deposition velocity measurements and model estimates over vineyard, cotton, grass and deciduous forest in summer, *Atmos. Environ.*, 30, 2363-2369, 1996.
- Padro, J., and Edwards, G.C.: Sensitivity of ADOM dry deposition velocities to input parameters: a comparison with measurements for SO₂ and NO₂ over three land-use types, *Atmosphere-Ocean*, 29, 667-685, 1991.
- Padro, J., den Hartog, G., and Neumann, H. H.: An investigation of the ADOM dry deposition module using summertime O₃ measurements above a deciduous forest, *Atmos. Environ.*, 25, 1689-1704, 1991.
- Padro, J., Neumann, H.H., and den Hartog, G.: Modelled and observed dry deposition velocity of O₃ above a deciduous forest, *Atmospheric Environment*, 25 A, 1689-1704, 1992.
- Palmes, E. D. and Gunnison, A. F.: Personal monitoring device for gaseous contaminants, *American Industrial Hygiene Association Journal*, 34, 78-81, 1973.
- Palmes, E. D., Gunnison, A. F., DiMattio, J., and Tomczyk, C.: Personal sampler for nitrogen dioxide, *American Industrial Hygiene Association Journal*, 37, 570-577, 1976.
- Parmar, R. S., Satsangi, G. S., Lakhani, A., Srivastava, S. S., Prakash, S; Rastogi, R. K., Ramkumar, K. L., Venugopal, V., and Manohar, S. B.: Diurnal and season behaviour of

- atmospheric ammonia and nitric acid in a suburban site, Proceedings of the 10th National Symposium on Environment-Pollution in Urban Environment, pp. 66-70, 2000.
- Paulson, C. A.: The mathematical representation of wind speed and temperature profiles in the unstable atmospheric surface layer, *J. appl. Met.*, 9, 857-861, 1970.
- Peden, D. B.: Air pollution in asthma: effect of pollutants on airway inflammation, *Annals Allergy Asthma and Immunology*, 87, 12–17, 2001.
- Petroff, A., Mailliat, A., Amielh, M., and Anselmet, F. : Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part I: Review of present knowledge, *Atmospheric Environment*, 42, 3625-3653, 2008.
- Phoenix, G. K., Hicks, W. K., Cinderby, S., Kuylenstierna, J. C. I., Stock, W. D., Dentener, F. J., Giller, K. E., Austin, A. T., Lefroy, R. D. B., Gimeno, B. S., Ashmore, M. R., and Ineson, P.: Atmospheric nitrogen deposition in world biodiversity hotspots: the need for a greater global perspective in assessing N deposition impacts, *Global Change Biology*, 12, 470–476, 2006.
- Pienaar, J. J.: Proposal of a new IGAC II task: DEBITS II (Deposition of Biogeochemically Important Trace Species), available at: <http://www.igac.noaa.gov/DEBITS.php>., 2005.
- Pilegaard, K., Hummelshoj, P., and Jensen, N.O.: Fluxes of ozone and nitrogen dioxide measured by eddy correlation over a harvested wheat field, *Atmospheric Environment* 32, 1167–1177, 1998.
- Pineda Rojas A. L. and Venegas, L. E.: Atmospheric deposition of nitrogen emitted in the Metropolitan Area of Buenos Aires to coastal waters of de la Plata River, *Atmos. Environ.*, 43, 1339–1348, 2009
- Pio, C. A. and Harrison, R.M.: The equilibrium of ammonium Chloride aerosol with gaseous hydrochloric acid and ammonia under tropospheric conditions, *Atmospheric Environment*, 21, 1243-1246, 1987.
- Potter, P., Ramankutty, N., Bennett, E. M., and Donner, S. D.: Characterizing the spatial patterns of global fertilizer application and manure production, *Earth Interaction*, Vol. 14, Paper N° 2, pp. 22, 2010.
- Puxbaum, H., and Gregori, M.: Seasonal and annual deposition rates of sulphur, nitrogen and chlorides species to an oak forest in north-eastern Austria (Wolkersdorf, 240 m A.S.L.), *Atmos. Environ.*, 32 (20), 3557-3568, 1998.
- Redelsperger, J.-L., Diongue, A., Diedhiou, A., Ceron, J.-P., Diop, M., Gueremy, J.-F., Lafore, J.-P. : Multi-scale description of a Sahelian synoptic weather system representative of West African Monsoon, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 128, 1229-1257, 2002.
- Rhode, H.: Human impact of the atmospheric sulfur balance, *Tellus*, 51A-B, 110–122, 1999.
- Roberts, G., Wooster, M. J., Perry, G. L. W., Drake, N., Rebelo, L-M., and Dipotso, F.: Retrieval of biomass combustion rates and totals from fire radiative power observations: Part 2 - application to southern Africa using geostationary SEVIRI Imagery, *Journal of Geophysical Research*, 110 (D21111), doi:10.1029/2005- JD006018, 2005.
- Rondon, A., and Sanhueza, E.: Seasonal variation of gaseous HNO₃ and NH₃ at a tropical savannah site, *J. Atmos. Chem.*, 11, Number 3/octobre 1990.
- Rondon, A., Johansson, C., and Sanhueza, E.: Emission of nitric oxide from soils and termite nests in a trachypogon savanna of the Orinoco Basin, *J. Atmos. Chem.* 17, 293–306, 1993.

- Ruijgrok, W., Davidson, C. I., and Nicholson, K. W.: Dry deposition of particles-implications and recommendations for mapping of deposition over Europe, *Tellus*, 47B, 587-601, 1995.
- Ruijgrok, W., Tieben, H., and Eisinga, P.: The dry deposition of particles to a forest canopy: a comparison of model and experimental results, *Atmospheric Environment*, 31, 399-415, 1997.
- Rummel, U., Ammann, C., Kirkman, G. A., Moura, M. A. L., Foken, T., Andreae, M. O., and Meixner, F. X.: Seasonal variation of ozone deposition to a tropical rain forest in southwest Amazonia, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5415–5435, 2007.
- Samain, O., Kergoat, L., Hiernaux, P., Guichard, F., Mougou, E., Timouk, F., and Lavenu, F.: Analysis of the in situ and MODIS albedo variability at multiple timescales in the Sahel, *Journal of Geophysical Research*, 113, D14119, 2008.
- Sanchez, M.L. and Rodriguez, R.: Ozone dry deposition in a semi-arid Steppe and in a coniferous forest in Southern Europe, *Journal of Air and Waste Management Association*, 47, 792-799, 1997.
- Sanhueza, E., Hao, W. M., Scharffe, D., Donoso, L., and Crutzen, P. J.: N₂O and NO emissions from soils of the northern part of the Guyana Shield, Venezuela, *J. Geophys. Res.*, 95, 22481–22488, 1990.
- Saunio, M., Reeves, C. E., Mari, C. H., Murphy, J. G., Stewart, D. J., Mills, G. P., Oram, D. E., and Purvis, R. M.: Factors controlling the distribution of ozone in the West African lower troposphere during the AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis) wet season campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6135-6155, 2009.
- Sauvage, B., Thouret, V., Cammas, J.-P., Gheusi, F., Athier, G., and Nédélec, P.: Tropospheric ozone over Equatorial Africa : regional aspects from the MOZAIC data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 311–335, 2005.
- Schjoerring, J.K.: Long-term quantification of ammonia exchange between agricultural crop land and the atmosphere-I. Evaluation of a new method based on passive flux samplers in gradient configuration, *Atmospheric Environment*, 29, 885-893, 1995.
- Schlecht, E., Fernandez-Rivera, S., and Hiernaux, P.: Timing, size and N-concentration of faecal and urinary excretions in cattle, sheep and goats – can they be used for better manuring of cropland? in: *Soil fertility Management in West African Land Use Systems*, edited by: Renard, G., Neef, A., Becker, K., and von Oppen, M., Margraf Verlag, Weikersheim, Germany, 361–368, 1998.
- Schlesinger, W. H., and Hartley, A. E.: A global budget for NH₃, *Biogeochemistry*, 15, 191-211, 1992.
- Scholes, R. J. and Archer, S. R.: Tree-grass interactions in savannas, *Annual Review of Ecology and Systematics*, 28, 517-544, 1997.
- Scholes, M., Martin, R., Scholes, R. J., Parsons, D., and Winstead, E.: NO and N₂O emissions from savanna soils following the first simulated rains of the season, *Nutr. Cycl. Agroecosys.* 48, 115– 122, 1997.
- Schwede, D., Zhang, L., Vet, R., and Lear, G.: An intercomparison of the deposition model used in the CASTNET and CAPMoN networks, *Atmos. Environ.* 45, 1337–1346, 2011.
- Seinfeld, J.H. : *Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution*, Wiley, New York, 1986.

- Seinfeld, J. and Pandis, S.: *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, John Wiley and Sons, 1998.
- Sellers, P. J., Randall, D. A., Collatz, J. G., Berry, J. A., Field, C. B., Dazlich, D. A., Collelo, G. D., and Bounoua, L.: A revised land surface parameterization (SiB2) for atmospheric GCMs, Part I: Model formulation, *J. of Climate*, 9, 676–705, 1996.
- Sentelhas, P. C., Marta, A. D., Orlandini, S., Santos, E. A., Gillespie, T. J., Gleason, M. L. : Suitability of relative humidity as an estimator of leaf wetness duration, *Agricultural and Forest Meteorology*, 148, 392-400, 2008.
- Serça, D.: *Echanges biosphère-atmosphère de composés de l'azote en milieu tropical*, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier-Toulouse III, Toulouse, France, pp. 156, 1995.
- Serça, D., Delmas, R., Jambert, C., Labroue, L.: Emissions of nitrogen oxides from equatorial rain forest in central Africa: origin and regulation of NO emission from soils, *Tellus*, 46B, 243-254, 1994.
- Serça, D., Delmas, R., Le Roux, X., Parsons, D. A. B., Scholes, M. C., Abbadie, L., Lensi, R., Ronce, O., and Labroue, L. : Comparison of nitrogen monoxide emissions from several African tropical ecosystems and influence of season and fire, *Global Biogeochem. Cycles*, 12, 637–651, 1998.
- Shen J. L., Tang, A. H., Liu, X. J., Fangmeier, A., Goulding, K. T. W., and Zhang, F. S.: High concentrations and dry deposition of reactive nitrogen species at two sites in the North China Plain, *Environ. Pollut.*, 157, 3106–3113, 2009.
- Sigha-Nkamdjou, L., Galy-Lacaux, C., Pont, V., Richard, S., Sighoumou, D., and Lacaux, J. P.: Rainwater chemistry and wet deposition over the equatorial forested ecosystem of Zoétélé (Cameroon), *J. Atmos. Chem.*, 46, 173–198, 2003.
- Sillman, S.: The relation between ozone, NO_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments, *Atmospheric Environment*, 33 (12), 1821–1845, 1999.
- Simpson, D., Fagerli, H., Jonson, J. E., Tsyro, S., Wind, P., and Tuovinen, J.-P.: *Transboundary Acidification, Eutrophication and Ground Level Ozone in Europe. Part I: Unified EMEP Model Description*, EMEP Status Report 2003, ISSN 0806-4520, Det Meteorologisk Institutt, Oslo, 2003.
- Skeffington, R. A., Whitehead, P. G., Heywood, E., Hall, J. R., Wadsworth, R. A., and Reynolds, B.: Estimating uncertainty in terrestrial critical loads and their exceedances at four sites in the UK, *Sci. Total Environ.*, 382, 199–213, 2007.
- Slinn, W.G.N.: Predictions for particle deposition to vegetative surfaces, *Atmospheric Environment* 16, 1785-1794, 1982.
- Smith, R. I., Fowler, D., Sutton, M. A., Flechard, C., and Coyle, M.: Regional estimation of pollutant gas deposition in the UK: model description, sensitivity analyses and outputs, *Atmos. Environ.*, 34, 3757–3777, 2000.
- Smith, S. J., Pitcher, H., and Wigley, T. M. L.: Global and regional anthropogenic sulfur dioxide emissions, *Global and Planetary Change*, 29, 99–119, 2001.
- Sorimachi, A., Sakamoto, K., Ishihara, H., Fukuyama, T., Utiyama, M., Liu, H., Wang, W., Tang, D., Dong, X., Quan, H.: Measurements of sulfur dioxide and ozone dry deposition over short vegetation in northern China - a preliminary study, *Atmospheric Environment*, 37, 3157–3166, 2003.

- Sparks, J. P., Monson, R. K., Sparks, K. L., and Lerdau, M.: Leaf uptake of nitrogen dioxide (NO₂) in a tropical wet forest: implication for tropospheric chemistry, *Oecologia* 127, 214-221, 2001.
- Sportisse, B.: A review of parametrizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides, *Atmospheric Environment*, 41, 2683-2698, 2007.
- Spranger, T., Hettelingh, J.-P., Slootweg, J., and Posch, M.: Modelling and mapping long-term risks due to reactive nitrogen effects: an overview of LRTAP convention activities, *Environmental Pollution*, 154, 482-487, 2008.
- Stevenson, K., Bush, T., and Mooney, D.: Five years of nitrogen dioxide measurement with diffusion tube samplers at over 1000 sites in the UK, *Atmos. Environ.*, 35, 281-287, 2001.
- Stewart, D. J., Taylor, C. M., Reeves, C. E., and McQuaid, J. B.: Biogenic nitrogen oxide emissions from soils: Impact on NO_x and ozone over West Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis): Observational study, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2285-2297, 2008.
- Stroppiana, D., Brivio, P. A., Gregoire, J.-M., Lioussé, C., Guillaume, B., Granier, C., Mieville, A., and Chin, M.: Comparison of global monthly CO emission maps derived from remotely sensed burned area datasets, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 10, 17657-17697, 2010.
- Sultan, B. and Janicot, S.: Abrupt shift of the ITCZ over West Africa and intra-seasonal variability, *Geophysical Research Letters*, 27, 3353-3356, 2000.
- Sultan, B. and Janicot, S.: The West Africa Monsoon Dynamics. Part II: The “Presonset” and “onset” of the Summer Monsoon, *Journal of Climate*, 16, 3407-3427, 2003.
- Sutton M. A., Moncrieff J. B., Fowler D.: Deposition of atmospheric ammonia to moorlands, *Environ. Pollut.*, **75**, 15-24, 1992.
- Sutton, M. A., Fowler, D., and Moncrieff, J. B.: The exchange of atmospheric ammonia with vegetated surfaces. I: Unfertilized vegetation, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 119, 1023-1045, 1993a.
- Sutton, M. A., Fowler, D., Moncrieff, J. B., and Storeton-West, R. L.: The exchange of atmospheric ammonia with vegetated surfaces. II: Fertilized vegetation, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 119, 1047-1070, 1993b.
- Sutton, M. A., Asman, W. A. H., Schjorring, J. K.: Dry deposition of reduced nitrogen, *Tellus*, 46B, 255-273, 1994.
- Sutton, M. A., Fowler, D., Burkhardt, J. K., and Milford, C.: Vegetation atmosphere exchange of ammonia: canopy cycling and the impacts of elevated nitrogen inputs, *Water Air Soil Poll.*, 85, 2057-2063, 1995a.
- Sutton, M. A., Schjoerring, J. K., and Wyers, G. P.: Plant-atmosphere exchange of ammonia, *Philosophical Transaction of the Royal Society*, London A, 351, 261-278, 1995b.
- Sutton, M. A., Burkhardt, J. K., Guerin, D., Nemitz, E., and Fowler, D.: Development of resistance models to describe measurements of bi-directional ammonia surface-atmosphere exchange, *Atmos. Environ.*, 32, 473-480, 1998.
- Sutton, M. A., Nemitz, E., Erisman, J. W., Beier, C., Butterbach Bahl, K., Cellier, P., de Vries, W., Cotrufo, F., Skiba, U., DiMarco, C., Jones, S., Laville, P., Soussana, J. F., Loubet, B., Twigg, M., Famulari, D., Whitehead, J., Gallagher, M. W., Neftel, A.,

- Flechard, C. R., Herrmann, B., Calanca, P. L., Schjoerring, J. K., Daemmgen, U., Horvath, L., Tang, Y. S., Emmett, B.A., Tietema, A., Penuelas, J., Kesik, M., Brueggemann, N., Pilegaard, K., Vesala, T., Campbell, C. L., Olesen, J. E., Dragosits, U., Theobald, M. R., Levy, P., Mobbs, D. C., Milne, R., Viovy, N., Vuichard, N., Smith, J. U., Smith, P., Bergamaschi, P., Fowler, D., and Reis, S.: Challenges in quantifying biosphere atmosphere exchange of nitrogen species, *Environ. Pollut.* 150, 125–139, 2007.
- Sutton, M., Reis, S., and Baker, S. M. H.: Atmospheric Ammonia, detecting emission changes and environmental impacts. Results of an expert workshop under the convention of long range transboundary air pollution, springer edition, ISBN 978-1-4020-9120-9, 2009.
- Takahashi, A., Sato, K., Wakamatsu, T., Fujita, S.: Atmospheric deposition of acidifying components to a Japanese cedar forest, *Water, Air and Soil Pollution*, 130, 559-564, 2001.
- Takahashi, A., Sato, K., Wakamatsu, T., Fujita, S., Yoshikawa, K.: Estimation of dry deposition of sulfur to a forest using an inferential method. Influence of canopy wetness on SO₂ dry deposition, *Journal of Japan Society for Atmospheric Environment*, 37 (3), 192-205, 2002.
- Tetzlaff, G., Dlugi, R., Friedrich, K., Gross, G., Hinneburg, D., Pahl, U., Zelger, M., and Moelders, N.: On modeling dry deposition of long-lived and chemically reactive species over heterogeneous terrain, *J. Atmos. Chem.*, 42, 123–155, 2002.
- Thorncroft, C. D. and Blackburn, M.: Maintenance of the African easterly jet, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 125, 763-786, 1999
- Tidblad, J., Kucera, V., Samie, F., Das, S. N., Bhamornsut, C., Peng, L. P., Lung So, K., Dawei, Z., Hong Lien, L. T., Schollenberger, H., Lungu, C. V., and Simbi, D.: Exposure Programme on Atmospheric Corrosion Effects of Acidifying Pollutants in Tropical and Subtropical Climates, *Water, Air and Soil Pollution* 7, 241–247, 2007.
- Trebs, I., Lara, L. L., Zeri, L. M. M., Gatti, L. V., Artaxo, P., Dlugi, R., Slanina, J., Andreae, M. O., and Meixner, F. X.: Dry and wet deposition of inorganic nitrogen compounds to a tropical pasture site (Rondônia, Brazil), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 447–469, doi:10.5194/acp-6-447-2006, 2006.
- Trebs, I., Meixner, F. X., Slanina, J., Otjes, R. P., Jongejan, P., and Andreae, M. O.: Real-time measurements of ammonia, acidic trace gases and water-soluble inorganic aerosol species at a rural site in the Amazon Basin, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 967–987, doi:10.5194/acp-4-967-2004, 2004.
- Tsai, J. L., Chen, C. L., Tsuang, B. J., Kuo, P. H., Tseng, K. H., Hsu, T.F., Sheu, B. H., Liu, C. P., and Hsueh, M. T.: Observation of SO₂ dry deposition velocity at a high elevation flux tower over an evergreen broadleaf forest in Central Taiwan, *Atmos. Environ.*, 44, 1011-1019, 2010.
- Tummon, F., Solmon, F., Lioussé, C., and Tadross, M.: Simulation of the direct and semi-direct aerosol effects on the southern Africa regional climate during the biomass burning season, *J. Geophys. Res.*, 115(D19), doi:10.1029/2009JD013738, 2010.
- Turner, J. and Lambert, M. J.: Sulfur nutrition in forests in atmospheric sulfuric deposition: environmental impact and health effects, edited by D.S Schriener, C.R. Richmond, S.E. Lindberg, Ann Arbor Science Publishers, 321-333, 1980.

- Turner, N. C., Rich, S., and Waggoner, P. E.: Removal of ozone by soil, *J. Environ. Quality*, **2**, 259-264, 1973.
- Van Aalst, R.M., and Diederer, H.S.M.A.: Removal and transformation processes in the atmosphere with respect to SO₂ and NO_x, In: *International Air Pollution Modelling*, edited by: Zwerver, S., and van Ham J., Plenum Press, New York, pp. 83-147, 1985.
- van Breemen, N., Burrough, P. A., Velthorst, E. J., Dobben, H. F. v., Wit, T. D., Ridder, T. B., Reijnders, H. F. R.: Soil acidification from atmospheric ammonium sulphate in forest canopy throughfall, *Nature*, **299**, 548– 550, 1982.
- van Breemen, N.: *Acid Sulfate Weathering*, Soil Science Society of America, Madison, Wisconsin, USA, pp. 95–108, 1982.
- van Breemen, N.: Selected Papers of the Ho Chi Minh City Symposium on Acid Sulphate Soils, ILRI Pub No. 53, ILRI, Wageningen, The Netherlands, pp. 391–401, 1993.
- van der Werf, G. R., Dempewolf, J., Trigg, S. N., Randerson, J. T., Kasibhatla, P. S., Giglio, L., Murdiyarso, D., Peters, W. Morton, D. C., Collatz, G. J., Dolman, A. J., and DeFries, R. S.: Climate regulation of fire emissions and deforestation in equatorial Asia, *P. Natl. Acad. Sci. USA*, **105**, 20350–20355, 2008.
- Van Der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., and Jr., A. F. A.: Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atmos. Chem. Phys.*, **6**(11), 3423-3441, 2006.
- Van Hove, L. W. A. and Adema, E. H.: The effective thickness of water films on leaves, *Atmospheric Environment*, **16**, 2933-2936, 1996.
- Van Hove, L. W. A., Koops, A. J., Adema, E. H., and Vredenberg W. J.: The uptake of atmospheric ammonia by leaves, In *Air Pollution and Ecosystems*, P. Mathy Ed., Reidel, Brussels / Dordrecht, pp734-738, 1988.
- Van Hove, L. W. A., Koops, A. J., Adema, E. H., Vredenberg, W. J., and Pieters, G. A.: A study of the adsorption of NH₃ and SO₂ on leaf surfaces, *Atmos. Environ.*, **23**, 1479-1486, 1989.
- van Jaarsveld, J. A.: The Operational Priority Substances model. Description and validation of OPS-Pro 4.1, RIVM report 500045001/2004, RIVM, Bilthoven, the Netherlands, 2004.
- Vila-Guerau de Arellano, J. and Duynkerke, P. G.: influence of chemistry on the flux-gradient relationships for the NO-O₃-NO₂ system, *Bound. Lay. Meteorol.*, **61**, 375–387, 1992.
- Vitousek, P. M., Aber, J. D., Howarth, R.W., Likens, G. E., Matson, P. A., Schindler, D. W., Schlesinger, W. H. and Tilman, D. G.: Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences, *Ecol. Applic.*, **7**, 737–750, 1997.
- Yamulki, S. and Harrison, R. M.: Ammonia-surface exchange above an agricultural field in southeast England, *Atmospheric Environment*, **30**, 109-118, 1996.
- Yienger, J. J., and Levy II. H.: Empirical model of global soil biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.*, **100**, 1447– 1464, 1995.
- Yoboué V.: Caractéristiques physiques et chimiques des aérosols et des pluies collectés dans la savane humide de Côte d'Ivoire, Thèse de Doctorat n° 914, Université Paul Sabatier, Toulouse, France. 146p, 1991.
- Yoboué, V., Galy-Lacaux, C., Lacaux, J. P., and Silue, S. : Rainwater Chemistry and Wet Deposition over the Wet Savanna Ecosystem of Lamto (Côte d'Ivoire), *J. Atmos. Chem.*, **52**, 117–141, 2005.

- Walker, J. T., Robarge, W. P., Wu, Y., and Meyers, T. P.: Measurement of bi-directional ammonia fluxes over soybean using the modified Bowen-ratio technique, *Agric. For. Meteorol.*, 138, 54–68, doi:10.1016/j.agrformet.2006.03.011, 2006.
- Wallens, S.: Modélisation des émissions de composés organiques volatils par la végétation, Thèse de Doctorat, Université Libre de Bruxelles, Belgique, 211p, 2004.
- Walton, S., Gallagher, M. W., Choularton, T. W., and Duyzer, J.: Ozone and NO₂ exchange to fruit orchards, *Atmos. Environ.*, 31, 2767-2776, 1997.
- Wang, W. C., Pinto, J. P., and Yung, Y. L.: Climatic effect due to halogenated compounds in the Earth's atmosphere, *J. Atmos. Sci.*, 37, 333–338, 1980.
- Warashina, M., Tanaka, M., and Tsujino, Y.: Atmospheric concentrations of sulfur dioxide and Nitrogen dioxide in China and Korea measured by Using the improved passive sampling method, *Water, Air, and Soil Pollution*, Vol.130, No.1-4, 2001.
- Weiss, A. and Norman, J.M.: Partitioning solar radiation into direct and diffuse visible and near infrared components, *Agricultural and Forest Meteorology*, 34, 205–214, 1985.
- Wesely, M.L., Cook, D.R., and Williams, R.M.: Field measurements of small ozone fluxes to snow, wet bare soil and lake water, *Boundary Layer Meteorology* 20, 459-471, 1981.
- Wesely, M. L., Cook, D. R., Hart, R. L., and Speer, R. E.: Measurements and parameterization of particle sulfur deposition over grass, *Journal of Geophysical Research*, 90, 2131-2143, 1985.
- Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, 23, 1293–1304, 1989.
- Wesely, M. L. and Hicks, B. B.: A review of the current status of knowledge in dry deposition, *Atmos. Environ.*, 34, 2261–2282, 2000.
- Wesely, M. L., Doskey, P. V., and Shannon, J. D.: Deposition Parameterizations for the Industrial Source Complex (ISC3) Model, report to U.S. EPA, Argonne National Laboratory, USA, 2001.
- Wichink Kruit, R. J., van Pul, W. A. J., Otjes, R. P., Hofschreuder, P., Jacobs, A. F. G, and Holtslag, A. A. M.: Ammonia fluxes and derived canopy compensation points over non-fertilized agricultural grassland in The Netherlands using the new gradient ammonia-High accuracy-Monitor (GRAHAM), *Atmos. Environ.*, 41, 1275-1287, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.09.039, 2007.
- Wichink Kruit, R. J., Jacobs, A. F. G., Holtslag, A. A. M.: Measurements and estimates of leaf wetness over agricultural grassland for dry deposition modeling of trace gases, *Atmospheric Environment*, 42, 5304-5316, 2008.
- Wichink Kruit, R. J., van Pul, W. A. J., Sauter, F. J., van den Broek, M., Nemitz, E., Sutton, M. A., Krol, M., and Holtslag, A. A. M.: Modelling the surface-atmosphere exchange of ammonia, *Atmos. Environ.*, 44(7), 945–957, 2010.
- Williams, E. J., Guenther, A., and Fehsenfeld, F. C.: An inventory of nitric oxide emissions from soils in the United States, *J. Geophys. Res.*, 97, 7511–7519, 1992.
- Wilson, J. and Baldocchi, D.: Seasonal and interannual variability of energy fluxes over a broadleaved temperate deciduous forest in North America, *Agricultural and Forest Meteorology*, 100, 1–18, 2000.
- Wiman, B. L. B. and Agren, G. I.: Aerosol depletion and deposition in forests, a model analysis, *Atmospheric Environment*, 19, 335-362, 1985.

- Wyers, G. P. and Erisman, J.-W.: Ammonia exchange over coniferous forest, *Atmos. Environ.*, **32(3)**, 441-451, 1998.
- WMO (World Meteorological Organization) TD N° 829: Report on passive samplers for atmospheric chemistry measurements and their role in GAW (prepared by Carmichael), 20 pp., 1997.
- Wooster, M. J., Roberts, G., Perry, G. L. W., and Kaufman, Y. J.: Retrieval of biomass combustion rates and totals from fire radiative power observations: FRP derivation and calibration relationships between biomass consumption and fire radiative energy release, *J. Geophys. Res.*, 110 (D24311), doi:10.1029/2005JD006318, 2005.
- Zhang, L., Brook, J., Vet, R., Shaw, M., Finkelstein, P.: Evaluation and improvement of a dry deposition model using SO₂ and O₃ measurements over a mixed forest, *Water, Air and Soil Pollution: Focus* 1, 67–78, 2001a.
- Zhang, L., Gong, S., Padro, J., and Barrie, L.: A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module, *Atmos. Environ.*, **35**, 549–560, 2001b.
- Zhang, L., Moran, M.D., and Brook, J.R.: A comparison of models to estimate in-canopy photosynthetically active radiation and their influence on canopy stomatal resistance, *Atmospheric Environment*, **35**, 4463–4470, 2001c.
- Zhang, L., Moran, M., Makar, P., Brook, J., and Gong, S.: Modelling Gaseous Dry Deposition in AURAMS A Unified Regional Air-quality Modelling System, *Atmos. Environ.*, **36**, 537–560, 2002a.
- Zhang, L., Brook, J., and Vet, R.: On Ozone dry deposition With emphasis on non-stomatal uptake and wet canopies, *Atmos. Environ.*, **36**, 4787–4799, 2002b.
- Zhang, L., Brook, J., and Vet, R.: Evaluation of a non-stomatal resistance parameterization for SO₂ dry deposition, *Atmos. Environ.*, **37**, 2941–2947, 2003a.
- Zhang, L., Brook, J. R., and Vet, R.: A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models, *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 2067–2082, 2003b.
- Zhang, L., Brook, J. R., Vet, R., Wiebe, A., Mihele, C., Shaw, M., O'Brien, J. M., and Iqbal, S.: Estimation of contributions of NO₂ and PAN to total atmospheric deposition of oxidized nitrogen across Eastern Canada, *Atmos. Environ.*, **39**, 7030–7043, 2005.
- Zhang, L. and Vet, R.: A review of current knowledge concerning size-dependent aerosol removal, *China Particuology*, **4**, 272–282, 2006.
- Zhang, L., Vet, R., O'Brien, J. M., Mihele, C., Liang, Z., and Wiebe, A.: Dry deposition of individual nitrogen species at eight Canadian rural sites, *J. Geophys. Res.*, vol 114, D02301, doi:10.1029/2008JD010640, 2009.
- Zhang, L., Wright, P. L., and Asman, W. A. H.: Bi-directional air surface exchange of atmospheric ammonia – A review of measurements and a development of a big-leaf model for applications in regional-scale air-quality models, *J. Geophys. Res.*, **115**, D20310, doi:10.1029/2009JD013589, 2010.
- Zunckel, M., Koosailee, A., Yarwood, G., Maure, G., Venjonoka, K., van Tienhoven, A. M., and Otter, L.: Modelled surface ozone over southern Africa during the Cross Border Air Pollution Impact Assessment Project, *Environmental Modelling & Software* **21 (7)**, 911-924, 2006.

Zunckel, M., Venjonoka, K., Pienaar, J. J., Brunke, E.-G., Pretorius, O., Koosailee, A., Raghunandan, A., and van Tienhoven, M. A.: Surface ozone over southern Africa: synthesis of monitoring results during the Cross Border Air Pollution Impact Assessment project, *Atmos. Environ.*, 38, 6139-6147, 2004.

LISTE DES FIGURES

Introduction générale

- Figure 1:** Illustration des missions et des activités du programme GAW de WMO, incluant dans les dépôts atmosphériques le réseau DEBITS/IDAF (Atmospheric Deposition).3
- Figure 2 :** Réseaux sol de suivi long terme de la composition chimique de l'atmosphère –Contribution au programme Global Atmospheric Watch/ WMO- Mesures standardisées normes internationales. ...4

Chapitre 1

- Figure 1.1:** Cycle de l'azote dans le sol et productions gazeuses associées (Delmas et al., 2005).....12
- Figure 1.2 :** Position extrême de la Zone de Convergence Intertropicale (Z.C.I.T) et de la Confluence Intertropicale Océanique (C.I.O) et les principaux flux des masses d'air à l'échelle de l'Afrique en Janvier et Juillet (Lacaux et al., 1992a).....20
- Figure 1.3 :** Eléments de la circulation atmosphérique (AEJ, TEJ, cellules de Hadley (HD) et de Walker (WC); ITCZ, mousson, harmattan) sur le continent africain (**Livre Blanc AMMA, 2004**)...21
- Figure 1.4 :** Climats en Afrique (d'après Fischer et al., 2002).....22
- Figure 1.5 :** Carte d'occupation du sol de l'Afrique (GLC, 2000) (Mayaux et al., 2004).....23
- Figure 1.6 :** Pixels de feux au-dessus (des fenêtres) de l'Afrique du Nord (NAfr) et de l'Afrique du Sud (SAfr) respectivement en janvier et juillet 2007. La barre en couleur indique pour chaque pixel de feu le nombre de feux actifs identifiés. (source : Amraoui et al., 2010).....27

Chapitre 2

- Figure 2.1 :** IDAF, composante africaine du réseau international DEBITS incluant 26 sites. (Asie: CAD Composition of Asian Deposition et en Amérique du Sud : LBA The Large Scale Biosphere Atmosphere Experiment in Amazonia). Localisation des 10 stations IDAF sur la carte de végétation de l'Afrique éditée en 2000 (P. Mayaux et al, JRC Ispra, 2004).....38
- Figure 2.2 :** Pluviométrie mensuelle moyennée sur la période d'étude (1998-2007) pour les sites IDAF sur le transect savanes sèches (**a**), savanes humides (**b**), forêts (**b**) en Afrique de l'Ouest et Centrale..40
- Figure 2.3 :** Schéma du capteur passif IDAF (adapté de *ferm [1991]*).....47
- Figure 2.4 :** Représentation des gradients de concentrations à l'intérieur et à l'extérieur d'un capteur passif.....48

Figure 2.5 : Installation des capteurs passifs IDAF.	51
Figure 2.6 : Résultats du laboratoire analytique d'Aérodologie au programme d'inter comparaison WMO de 2005 à 2009. Résultats en anneaux des concentrations mesurées sur 3 échantillons tests. ..	53
Figure 2.7 (a,b,c,d) : Comparaison des mesures avec capteur passif IDAF et analyseur actif pour des gaz NO ₂ (a), SO ₂ (b), O ₃ (c) à Toulouse (France) de 1998-2000 ; pour O ₃ (d) à Djougou (Bénin) en 2006.	55
Figure 2.8 : Comparaison des capteurs passifs IDAF et IVL de NH ₃ (projet GURME) exposé au niveau des stations IDAF de 1998 à 2000.	56
Figure 2.9 : Le modèle de résistances « big-leaf » (Zhang et al., 2003b).	61
Figure 2.9 : Géométrie caractéristique d'un stomate et de l'épiderme d'une feuille (source, Wallens, 2004). e : la pression de vapeur d'eau (dans la feuille e_f , dans l'air e_{air}) ; $r_{b,v}$ est la résistance à l'échange de vapeur d'eau, due à la couche limite d'air autour de la feuille.	65

Chapitre 3

Figure 3.1. Evolution mensuelle des concentrations moyennes de NO ₂ (1998-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).....	80
Figure 3.2 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes de HNO ₃ (1998-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).	85
Figure 3.3 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes d'O ₃ (2001-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).	89
Figure 3.4 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes de NH ₃ (1998-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).	94
Figure 3.5 : Evolution mensuelle des concentrations moyennes de SO ₂ (2002-2007) sur le transect savanes sèches (a), savanes humides (b), forêts (c).	98

Chapitre 4

Figure 4.1 : Variation mensuelle des LAI MODIS moyennés sur la période 2000-2007 pour les sites IDAF, (a) en savanes sèches, (b) en savanes humides, (c) en forêts. Les barres verticales sont les écarts-types par rapport à la moyenne.	109
Figure 4.2 : évolution mensuelle des vitesses de dépôt sec d'O ₃ (a) et SO ₂ (b) obtenues avec les 3 approximations (1 ^{ère} : herbe ; 2 ^{ème} : arbuste ; 3 ^{ème} : savane).	114
Figure 4.3 (a, b, c) : Comparaison des vitesses dépôt sec de SO ₂ (a), O ₃ (b) et HNO ₃ (c) estimées à 10 m et 2 m à Banizoumbou, Katibougou et Lamto pour l'année 2006.	119
Photo1 : mât de mesure des concentrations des gaz à 10 m à Zoétéélé (forêt).	120

Figure 4.4 (a, b) : Variations mensuelles des vitesses de dépôt sec de SO ₂ (a) et O ₃ (b) moyennées sur la période 2002-2007 pour les sites IDAF.	126
Figure 4.5 (a, b, c) : Variations mensuelles des vitesses de dépôt sec de NH ₃ (a), NO ₂ (b) et HNO ₃ (c) moyennées sur la période 2002-2007 pour les sites IDAF.	127
Figure 4.6 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'azote (1998-2007) par NO ₂ (N-NO ₂) sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations NO ₂	134
Figure 4.7 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'azote (1998-2007) par HNO ₃ (N-HNO ₃) sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations HNO ₃	137
Figure 4.8 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'azote (1998-2007) par NH ₃ (N-NH ₃) sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations NH ₃	140
Figure 4.9 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec total d'azote (1998-2007) par NO ₂ , HNO ₃ et NH ₃ sur le transect savanes sèches (a) – savanes humides (b) – forêts (c).	143
Figure 4.10 : Flux moyens annuels de dépôt sec d'azote sous forme de NO ₂ , HNO ₃ et NH ₃ sur la période d'étude (1998-2007) dans les stations IDAF.	144
Figure 4.11 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec d'ozone (Ds_O ₃) (2001-2007) sur le transect savane sèche (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations O ₃	146
Figure 4.12 (a,b,c) : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt sec de soufre (2002-2007) par SO ₂ sur le transect savane sèche (a) – savanes humides (b) – forêts (c), associée à l'évolution des concentrations SO ₂	148
Figure 4.13 : Simulation du dépôt sec annuel de SO _x à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF pour le continent africain.	151

Chapitre 5

Figure 5.1: La cascade de l'azote (Galloway et al., 2003).	157
Figure 5.2. Evolution mensuelle des concentrations moyennes pondérées de NH ₄ ⁺ et NO ₃ ⁻ sur le transect savane sèche (a), savane humide (b), forêt (c) sur la période 1998-2007.	161
Figure 5.3: Evolution mensuelle moyennes des flux de dépôt humide total d'azote par les ions NH ₄ ⁺ et NO ₃ ⁻ sur le transect savane sèche (a), savane humide (b), forêt (c). Les barres d'erreur verticales indiquent les écart-types calculés sur la période d'étude (1998-2007).	164
Figure 5.4 (a,b) : Flux moyens annuels de dépôt humide d'azote par NH ₄ ⁺ et NO ₃ ⁻ (a) et leurs pourcentages de contribution au dépôt humide total d'azote (b) sur la période d'étude (1998-2007) dans les stations IDAF.	166

- Figure 5.5 (a,b,c)** : Evolution mensuelle des flux moyens de dépôt total d'azote (1998-2007) sur le transect savane sèche (a) – savane humide(b) – forêt (c). **dd** : dry deposition (dépôt sec) ; **wd** : wet deposition (dépôt humide).171
- Figure 5.6** : Flux moyens annuels de dépôt total d'azote (sec + humide) dans les stations IDAF sur la période d'étude 1998-2007. **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide.172
- Figure 5.7** : Contribution de chaque espèce azotée du dépôt sec (NO_2 , HNO_3 , NH_3 , pNO_3^- , pNH_4^+) et du dépôt humide (NO_3^- , NH_4^+) aux flux du dépôt total d'azote au niveau des sites IDAF. **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide ; **D** : dépôt total d'azote.173
- Figure 5.8 (a,b,c)** : Evolution mensuelle des flux moyens d'émission et de dépôt des composés d'azote sous forme oxydée sur le transect savane sèche (a) – savane humide (b)- forêt (c). **bio** : biogénique ; **BB** :biomass burning (combustion de biomasse). Les barres représentent les écart-types sur la période 2002-2007.178
- Figure 5.9** : Flux moyens annuels d'émission (a) et de dépôt (b) des composés d'azote oxydés pour les stations IDAF. **BF** :biofuel (feux domestiques) ; **BB** : biomass burning (combustion de biomasse) ; **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide. Les barres d'erreur représentent les incertitudes associées aux flux d'émission (a), et l'écart type des flux de dépôt sur la période d'étude 1998-2007 (b).180
- Figure 5.10** : Flux moyens annuels d'émission (a) et de dépôt (b) des composés d'azote réduits (NH_x) pour les stations IDAF. **BF** : feux domestiques ; **BB** : combustion de biomasse ; **dd** : dépôt sec ; **wd** : dépôt humide. Les barres d'erreur représentent les incertitudes associées aux flux d'émission (a), et l'écart type des flux de dépôt sur la période d'étude 1998-2007 (b).182
- Figure 5.11** : Simulation du dépôt annuel d'azote sous formes oxydée (NO_{y*}) à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF pour le continent africain. (a) NO_y dépôt sec, (b) NO_y dépôt humide, (c) NO_y dépôt total d'azote sous forme réduite. L'unité en kgN/ha/an est modifiée de l'unité originale ($\text{mgN/m}^2/\text{an}$). $\text{NO}_{y*}=\text{NO}_2+\text{HNO}_3+\text{NO}_3^-$186
- Figure 5.12** : Simulation du dépôt annuel d'azote sous formes réduite (NH_{x*}) à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF pour le continent africain. (a) NH_x dépôt sec, (b) NH_x dépôt humide, (c) NH_x dépôt total d'azote sous forme réduite. L'unité en kgN/ha/an est modifiée de l'unité originale ($\text{mgN/m}^2/\text{an}$).189
- Figure 5.13** : Simulation du dépôt total annuel d'azote à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), comparée aux observations IDAF pour le continent africain.190
- Figures 5.14** : Simulation du dépôt total annuel d'azote à l'échelle globale pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006) pour tous les continents. L'unité en kgN/ha/an est modifiée de l'unité originale ($\text{mgN/m}^2/\text{an}$). (Source : Galloway et al., 2008).191
- Figure 5.15** : Distribution globales des charges critiques moyennes d'eutrophisation (d'après Bouwman et al., 2002b), avec des flux de dépôt total d'azote estimés dans les écosystèmes africains à partir des mesures IDAF. (L'unité d'origine $\text{meq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ a été convertie en $\text{kgN.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$).193

LISTE DES TABLEAUX

Chapitre 1

- Tableau 1.1** : Principales catégories de sources de NO_x à l'échelle globale (Delmas et al., 2005).....11
- Tableau 1.2** : Sources d'émissions d'ammoniac (NH₃) à l'échelle globale. Références : **A** - Schlesinger et Hartley (1992), **B** – Dentener et Crutzen (1994), et **C** – Bouwman et al. (1997).....14
- Tableau 1.3** : Sources de quelques composés soufrés à l'échelle globale (source : Delmas et al., 2005).....16

Chapitre 2

- Tableau 2.1** : Caractéristiques géographiques et écologiques des stations IDAF de l'Afrique de l'Ouest et Centrale.39
- Tableau 2.2**: Détermination des saisons sèches et humides dans sur les sites IDAF pour la période 1998-2007 avec le cumul des précipitations saisonnières (mm) et annuelles (mm).39
- Tableau 2.3** : Solutions d'imprégnation et réactions chimiques pour les capteurs passifs IDAF de HNO₃, SO₂, NO₂, NH₃, O₃ (WMO TD No: 829; Al-Ourabi, 2002).47
- Tableau 2.4** : Synthèse des résultats de la détermination expérimentale de L/A et Lc (Al-Ourabi, 2002).49
- Tableau 2.5** : Valeurs des coefficients de diffusion des gaz.50
- Tableau 2.6** : Chromatographie ionique : paramètres analytiques.52

Chapitre 3

- Tableau 3.1** : Concentrations moyennes annuelles des gaz (en ppb) mesurés sur les sites IDAF, nombre d'échantillons et année de prélèvement entre parenthèse.78
- Tableau 3.2** : Concentrations interannuelles de NO₂ (en ppb) dans les stations IDAF.81
- Tableau 3.3** : Concentrations interannuelles de HNO₃ (en ppb) dans les sites IDAF.87
- Tableau 3.4** : Concentrations interannuelles d'O₃ (en ppb) dans les sites IDAF.92
- Tableau 3.5** : Concentrations interannuelles de NH₃ (en ppb) dans les sites IDAF.96
- Tableau 3.6** : Concentrations interannuelles de SO₂ (en ppb) dans les sites IDAF.99

Chapitre 4

Tableau 4.1a : définition des types de biomes.	112
Tableau 4.1b : Biomes (occupation du sol) et tous les paramètres liés.	112
Tableau 4.2 : Caractéristiques écologiques générales et climatiques des sites IDAF, longueurs de rugosités simulées par le modèle ISBA et gamme des LAI du satellite MODIS.	113
Tableau 4.3 : Tests de sensibilité à la présence de rosée dans l'estimation des V_d (SO_2) mensuelles pour les sites de Banizoumbou (RH=71%), Lamto (RH=81%) et Zoétéélé (RH=90%) respectivement sur le transect savane sèche-savane humide-forêt.	116
Tableau 4.4 : Test de sensibilité aux écarts de LAI à Banizoumbou, Lamto, Zoétéélé pour O_3	117
Tableau 4.5a : Concentrations mensuelles (en ppb) des gaz azotés (NO_2 , NH_3 , HNO_3) mesurées simultanément à 2 m (C1) et 10 m (C2) à Zoétéélé, Lamto, Banizoumbou sur la période septembre 2010-février 2011.	121
Tableau 4.5b : Concentrations mensuelles (en ppb) des gaz (SO_2 , O_3) mesurées simultanément à 2 m (C1) et 10 m (C2) à Zoétéélé, Lamto, Banizoumbou sur la période septembre 2010-février 2011. ...	121
Tableau 4.6 : Test de sensibilité sur la vitesse du vent (u) à Banizoumbou.	123
Tableau 4.7 : Vitesses de dépôt sec saisonnières des gaz pour les sites IDAF (2002-2007).	128
Tableau 4.8 : Vitesses de dépôt moyennes annuelles des gaz au niveau des sites IDAF pour la période 2002-2007.	129
Tableau 4.9 : Flux de dépôt sec moyens saisonniers et annuels d'azote ($\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) sous forme de NO_2 , HNO_3 et NH_3 dans les stations IDAF (d'Afrique de l'Ouest et Centrale) sur la période 1998-2007.	135
Tableau 4.10 : Flux de dépôt sec moyen annuel d'azote ($\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) sous forme de NO_2 , HNO_3 et NO_2 (avec leur contribution en pourcentage au dépôt sec total) sur les sites IDAF pour la période 1998-2007.	142

Chapitre 5

Tableau 5.1 : Concentrations moyennes pondérées annuelles des ions NH_4^+ et NO_3^- des sites IDAF d'Afrique de l'Ouest et Centrale sur la période d'étude 1998-2007.	160
Tableau 5.2 : Flux moyen annuel de dépôt humide d'azote par les ions NH_4^+ et NO_3^- ($\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) dans les stations IDAF sur la période d'étude 1998-2007.	165
Tableau 5.3 : Flux de dépôt sec moyen annuel d'azote par les particules pNH_4^+ et pNO_3^- ($\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) dans les stations IDAF, année de mesure des concentrations (96-04 pour 1996-2004).	169
Tableau 5.4 : Bilan de dépôt d'azote (en $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) incluant dépôt humide et dépôt sec sous forme gazeuse et particulaire (pourcentage de contribution de chaque type de dépôt au total) à l'échelle des écosystèmes africains.	172

Tableau 5.5 : Flux d'émission moyens annuels des composés azotés (en $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) dans les stations IDAF sur la période 2002-2006.176

Tableau 5.6 : Flux moyens annuels d'émissions et de dépôts et les incertitudes associées (en $\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$) des composés azotés oxydés et réduits dans les stations IDAF sur la période d'étude (1998-2007 pour le dépôt, et 2002-2006 pour l'émission).183

ACRONYMES

ABLE	Atmospheric Boundary Layer Experiment
AEJ	African Easterly Jet
AERONET	AERosol RObotic NETwork
ALMIP	AMMA Land surface Model Intercomparison Project
AMMA	Analyse Multidisciplinaire de la Mousson Africaine
ATSR	Along Track Scanning Radiometer
AVHRR	Advanced Very High Resolution Radiometer
AUF	Agence Universitaire Francophone
CAD	Composition of Asian deposition
CATCH	Couplage de l'Atmosphère Tropicale et du Cycle Hydrologique
CIO	Confluence Intertropicale Océanique
CNRM	Centre National de la Recherche Météorologique, Météo France
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique, en France
COV	Composés Organiques Volatils
DAAC	Distributive Active Archive Center
DEBITS	Deposition of Biogeochemically Important Trace Species
DECAFE	Dynamique Et Chimie Atmosphérique en Forêt Equatoriale
ECMWF	European Center for Medium-range Forecasting
EDGAR	Emission Database for Global Atmospheric Research
EDI	Equipe Emission-Dépôts-Impacts du LA.
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme
ESCOMPTE	Experience sur Site pour COntreindre les Modeles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions
EXPRESSO	EXPeriment for REgional Sources and Sinks of Oxidants
FAO	Food and Agricultural Organization
FIT	Front Inter Tropical
FRP	Fire Radiative Power

GAW	Global Atmospheric Watch
GEIA	Global Emissions Inventory Activity
GLC	Global Land Cover
GLIPHA	Global Livestock Production and Health Atlas
GTE	Global Tropospheric Experiment
IDAF	IGAC/DEBITS/AFRIQUE
IGAC	International Global Atmospheric Chemistry
IGACO	International Global Atmospheric Chemistry Observations
IGBP	International Geosphere Biosphere Program
INSU	Institut National des Sciences de l'Univers, en France
IOC	Inter Tropical Oceanic Convergence
ISBA	Interaction Sol Biosphere Atmosphere, modèle de surface du CNRM
ITCZ	Inter Tropical Convergence Zone
LA	Laboratoire d'Aérodologie
LAI	Leaf Area Index
LBA	Large Scale Biosphere - Atmosphere Experiment in Amazonia
LOP	Long Observation Period
LUC	Land Use Cover
MesoNH	Modele Météorologique méso-échelle, non hydrostatique
MOZAIC Craft	Measurement of OZone and water vapour by Air-bus in-service air-Craft
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
NASA	National Aeronautics and Space Administration
OMP	Observatoire Midi Pyrenées
ORE	Observatoire Régional de l'Environnement
PIB	Produit Intérieur Brut
PM	Particulate Matter
POLCA	POLLution des Capitales Africaines
Reg CM3	Regional Climatic Model version 3
SAFARI	Southern African Fire Atmosphere Research Initiative

SDU2E	Sciences De l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace
SiB	Simple Biosphere Model
SO	Service d'Observation
SPOT	Satellite Probatoire pour l'Observation de la Terre
STARE	Southern Tropical Atlantic Region Experiment
TEJ	Tropical Easterly Jet
TRACE-A	Transport and Atmospheric Chemistry near the Equator – Atlantic
UMD	University of Maryland
VGT	VEGETATION
VOC	Volatile Organic Compounds
WMO	World Meteorological Organisation
ZCIT	Zone de Convergence Inter-Tropicale

ANNEXES

ANNEXE I : Calcul du Rayonnement Actif pour la Photosynthèse (PAR).....	245
ANNEXE II : Comparaison des LAI MODIS (sites IDAF et zones régionales).....	251
ANNEXE III : Variation interannuelle des vitesses de dépôt sec des gaz SO ₂ , O ₃ , et HNO ₃ pour tous les sites IDAF.	257
ANNEXE IV (1, 2, 3, 4, 5, 6) : Tableaux récapitulatifs des vitesses de dépôt sec (V _d) du dioxyde d'azote (1), de l'acide nitrique (2), de l'ammoniac (3), de l'ozone (4) et du dioxyde de soufre (5) dans différents écosystèmes.	261
(6) : Comparaison des V _d diurnes de SO ₂ et O ₃ estimées dans cette étude avec celles de la littérature pour la forêt tropicale.	
ANNEXE V (1,2) : Tableaux récapitulatifs des flux de dépôt sec des gaz azotés (1) et de l'ozone (2) dans différents écosystèmes.	271

ANNEXE I :

Calcul du Rayonnement Actif pour la Photosynthèse (PAR)

ANNEXE I : Calcul du Rayonnement Actif pour la Photosynthèse (PAR)

Calcul du PAR_{soleil} et PAR_{ombre}

La lumière a un effet majeur sur la résistance stomatique. En effet, la dynamique de l'ouverture stomatique dépend quasi linéairement du rayonnement photosynthétiquement actif (PAR), qui est la source du processus. Le PAR (en anglais, Photosynthetically Active Radiation) est la partie du rayonnement solaire pratiquement équivalente à la partie visible du spectre solaire, son domaine de longueur d'onde s'étendant aux environs de 400 à 700 nm.

Les PAR_{soleil} et PAR_{ombre} sont les PAR reçus par les feuilles au soleil et à l'ombre respectivement. Leurs expressions sont modifiées de Norman (1982) comme discutée dans Zhang et al., 2001c :

Pour $LAI < 2,5$ ou $SR < 200 \text{ Wm}^{-2}$ (SR : le rayonnement solaire)

$$PAR_{ombre} = R_{diff} e^{(-0,5 LAI^{0,7})} + 0,07 R_{dir} (1,1 - 0,1 LAI) e^{-cos\theta}$$

$$PAR_{soleil} = R_{dir} \frac{cos\alpha}{cos\theta} + PAR_{ombre}$$

Pour les autres conditions :

$$PAR_{ombre} = R_{diff} e^{(-0,5 LAI^{0,8})} + 0,07 R_{dir} (1,1 - 0,1 LAI) e^{-cos\theta}$$

$$PAR_{soleil} = R_{dir}^{0,8} \frac{cos\alpha}{cos\theta} + PAR_{ombre}$$

Avec α l'angle entre la feuille et le soleil et a une valeur de 60° pour une canopée supposée à avoir une distribution angulaire sphérique de feuille.

R_{diff} et R_{dir} sont des flux de rayonnement visible (PAR) descendant (incident) au-dessus de la canopée à partir des rayonnements diffus et direct respectivement

les formules développées par Weiss et Norman (1985) pour le calcul des flux R_{dir} et R_{diff} .

Weiss et Norman (1985) ont développé une méthodologie à partir des données expérimentales pour partitionner le rayonnement solaire total en composantes directe et diffuse des bandes d'ondes à la fois du visible (PAR, 400-700 nm) et du proche infrarouge (NIR, 700-3000 nm).

Le rayonnement visible (PAR) du faisceau direct tombant sur une surface horizontale (en utilisant la loi de Beer) et le rayonnement visible diffus potentiel peuvent être donnés approximativement par :

$$I_{dir,PAR} = 600 e^{\frac{-0,185(\frac{P}{P_0})}{\cos\theta}} \cdot \cos\theta$$

$$I_{diff,PAR} = 0,4(600 - I_{dir,PAR}) \cdot \cos\theta$$

Avec θ l'angle solaire zénithal, P et P_0 respectivement la pression atmosphérique actuelle et la pression atmosphérique de référence au niveau de la mer (1013,25 hPa). Dans le code de dépôt, la surface horizontale est prise au niveau de la mer ($P/P_0=1$).

De même, les rayonnements potentiels proche infrarouge direct et diffus sont donnés par les équations :

$$I_{dir,NIR} = \left[720 e^{\frac{-0,06(\frac{P}{P_0})}{\cos\theta}} - \omega \right] \cdot \cos\theta$$

$$I_{diff,NIR} = 0,6 [720 - I_{dir,NIR} - \omega] \cdot \cos\theta$$

$$\omega = 1320 \cdot 10^{[-1,1950 + 0,4459 \log_{10}(\frac{1}{\cos\theta}) - 0,0345(\log_{10}(\frac{1}{\cos\theta}))^2]}$$

Avec ω l'absorption d'eau dans le proche infrarouge pour 10 mm d'eau en précipitation

Le rayonnement visible total (S_{PAR}) est estimé à partir de la mesure du rayonnement solaire incident total (SA) :

$$S_{PAR} = SA \left[\frac{I_{PAR}}{I_{PAR} + I_{NIR}} \right]$$

Avec $I_{PAR} = I_{dir,PAR} + I_{diff,PAR}$ et $I_{NIR} = I_{dir,NIR} + I_{diff,NIR}$

La fraction du PAR dans le faisceau direct est :

$$f_{PAR} = \frac{I_{dir,PAR}}{I_{PAR}} \left[1 - \left(\frac{0,9 - SA/(I_{PAR} + I_{NIR})}{0,7} \right)^{2/3} \right]$$

Finalement, les flux de rayonnement visible (PAR) incident (direct R_{dir} ; diffus, R_{diff}) sont estimés par les équations suivantes :

$$R_{dir} = S_{PAR} \cdot f_{PAR}$$

$$R_{diff} = S_{PAR} - R_{dir}$$

Détermination de l'angle solaire zénithal θ

Pour calculer la distance zénithale (θ) ou la hauteur ($\eta = \pi/2 - \theta$) du soleil en un lieu donné et à un instant donné, on peut utiliser, en première approximation, les lois classiques de la trigonométrie sphérique.

$$\cos\theta = \sin\eta = \sin\varphi \cdot \sin\delta + \cos\varphi \cdot \cos\delta \cdot \cos\alpha_H$$

Avec φ latitude du lieu, δ déclinaison du soleil, α_H l'angle horaire du soleil.

La déclinaison solaire (δ) varie en fonction du jour julien J :

$$\delta = 23,45 \sin\left(\frac{360(284 + J)}{365}\right)$$

L'angle horaire est donné par :

$$\alpha_H = 15^\circ(T_s - 12)$$

Où T_s est le temps solaire (vrai), qui s'obtient par cette formule :

$$T_s = T_L - C + E_t + \frac{I_{ref} - I}{15}$$

Avec

T_L : temps légal (heure des montres) ;

C : la différence (fixée par chaque pays) entre l'heure légale T_L et l'heure civile T_{CL} du fuseau horaire dans lequel il se trouve ($C=T_L-T_{CL}$) ;

ET : Equation du temps (terme correctif). La correction maximale due à l'équation du temps est de l'ordre de 16 mn, on peut ne pas en tenir compte en première approximation ;

La différence de longitude ($I-I_{ref}$) entre le lieu considéré et le lieu servant de référence au temps légal.

ANNEXE II :

Comparaison des LAI MODIS (sites IDAF et zones régionales)

ANNEXE II : Comparaison des LAI MODIS (sites IDAF et zones régionales)

Le LAI est un paramètre important dans le calcul des vitesses de dépôt sec (V_d) des gaz. Dans cette section, nous comparons l'évolution mensuelle des LAI des sites IDAF à ceux des zones régionales correspondantes à ces écosystèmes dans Kaptué et al. (2010). La figure 1 montre la nouvelle carte d'écosystèmes sur la zone AMMA (ECOCLIMAP-II) et la figure 2 les variations saisonnières du LAI MODIS de 2000 à 2007 moyennées par classe d'écosystèmes (Kaptué et al., 2010, Kaptué, 2010).

La figure 3 présente les LAI MODIS mensuels moyennés sur huit ans pour chaque site IDAF.

Dans le tableau 1, les LAI des sites IDAF (figure 1) utilisés dans la modélisation des vitesses de dépôt sec dans cette étude sont comparés aux LAI des classes d'écosystèmes rapportés dans Kaptué et al. (2010).

Tableau 1 : Comparaison des LAI MODIS entre les sites IDAF et les zones d'écosystèmes correspondantes

Ecosystèmes	Sites IDAF	LAI Sites IDAF (figure 3)	Classe écosystème (figure 1 et 2)	LAI zone régionale (ECOCLIMAP II) (figure 2)
Savanes sèches	Agoufou	0,2 - 1	14-15 (grasland)	LAI Max* < 1
	Banizoumbou	0,2 - 1	14-15 (grasland)	LAI Max < 1
	Katibougou	0,5 - 2	17-18 (drytropical copland)	LAI Max≈ 2
Savanes humide	Djougou	0,5 - 2	10 (deciduous woodland)	LAI Max≈ 2
	Lamto	2 - 4	7-8 (mosaic forest)	2-4
Forêts	Zoétéélé	5 (LAI moyen)	1 (evergreen forest)	4-6
	Bomassa	5 (LAI moyen)	1 (evergreen forest)	4-6

*LAI Maximal mesuré en zone sahélienne inférieur à 1

Nous remarquons (figures 2 et 3, tableau 1) que les LAI MODIS des sites spécifiques IDAF sont bien comparables à ceux des zones régionales correspondantes sur la carte de la végétation ECOCLIMAP II (Kaptue et al. 2010)

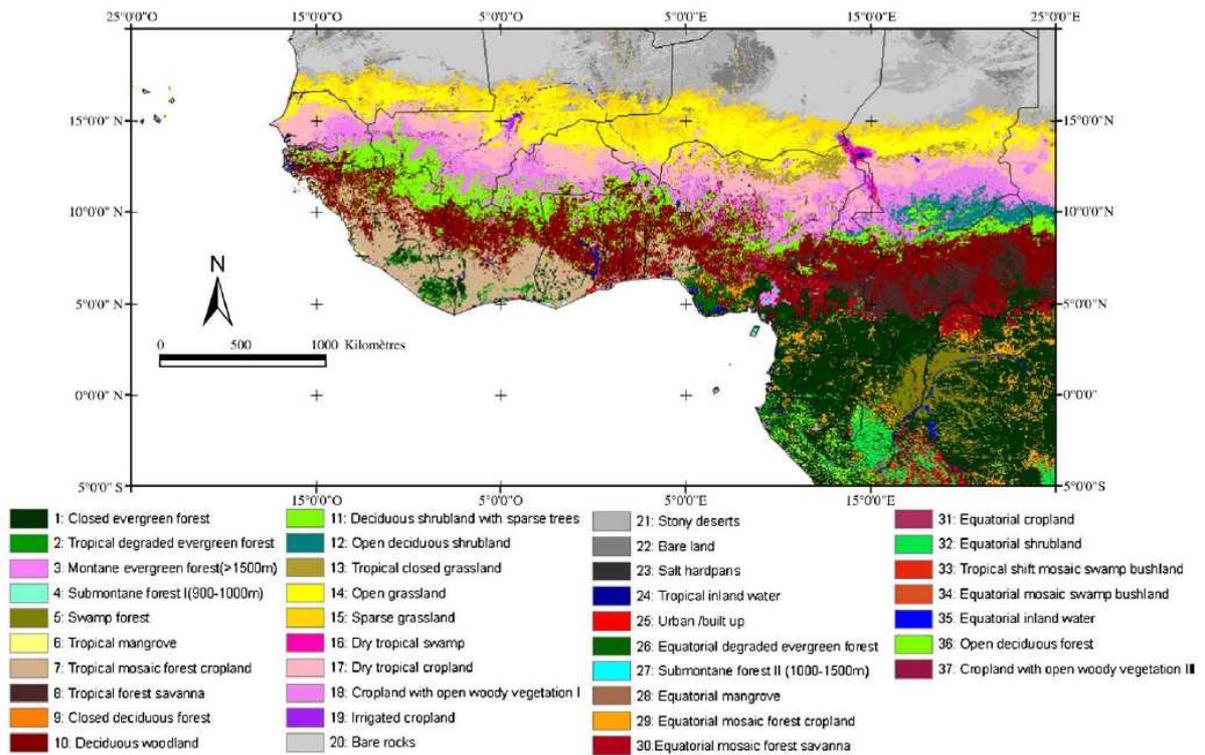


Figure 1 : Classification supervisée à 37 écosystèmes sur la zone AMMA (ECOCLIMAP-II)(Kaptué et al., 2010)

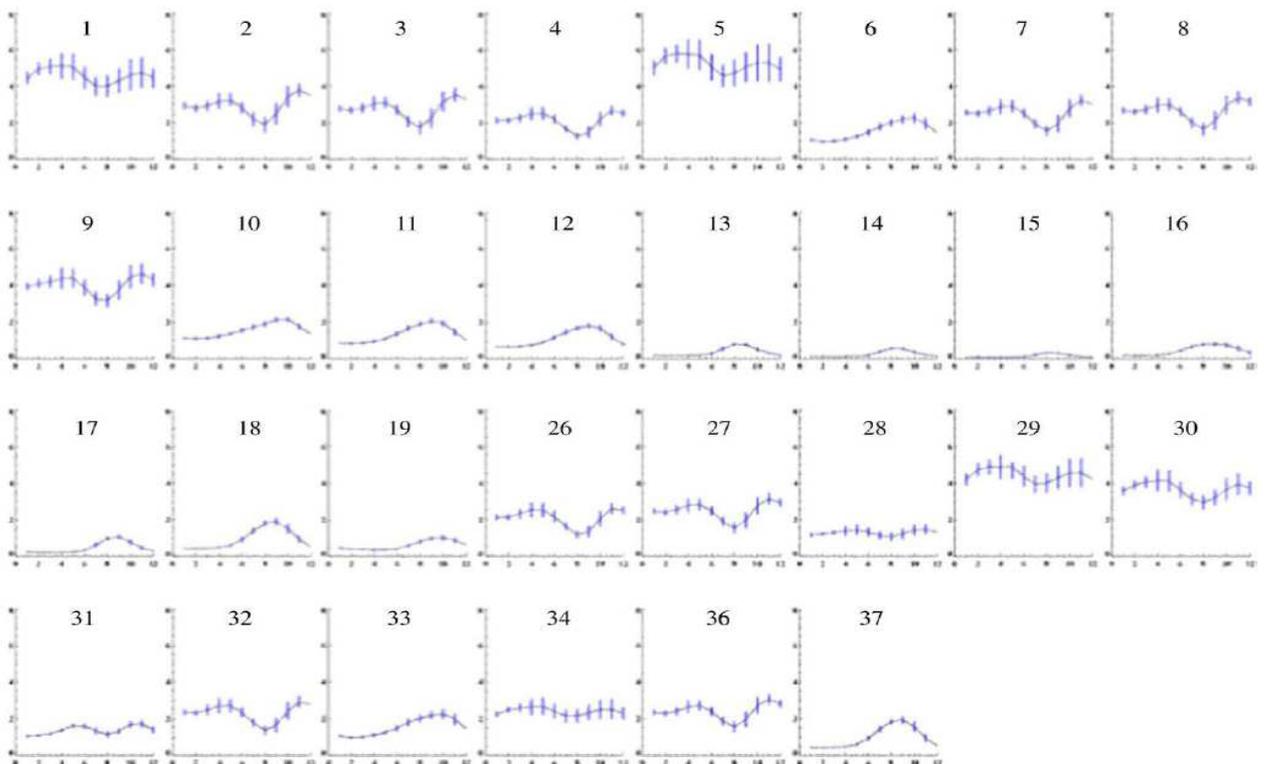
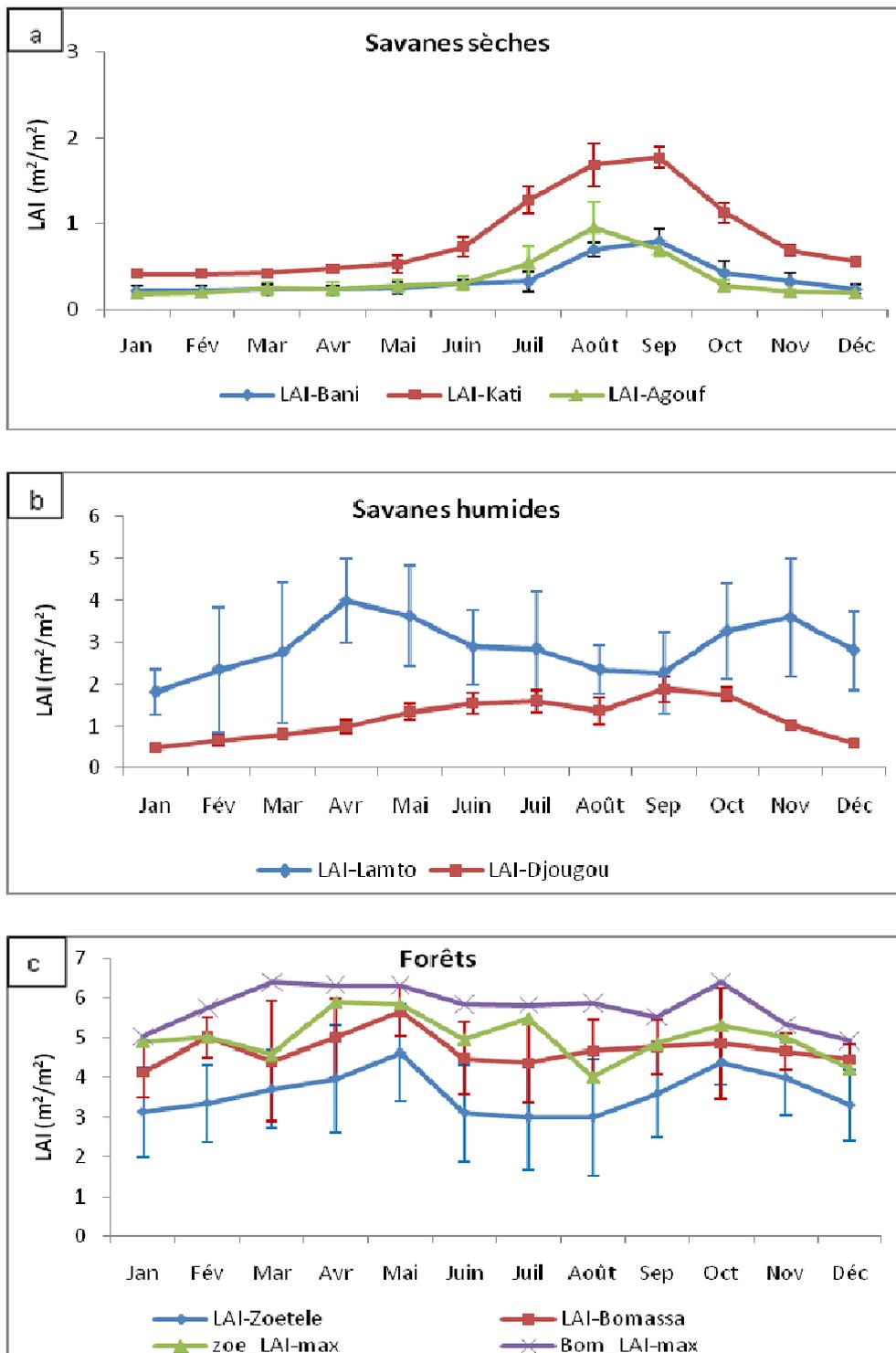


Figure 2 : Moyenne annuelle (période 2000-20007) du LAI saisonnier MODIS sur la zone AMMA. Les barres verticales décrivent la variabilité inter-annuelle (Kaptué et al., 2010)

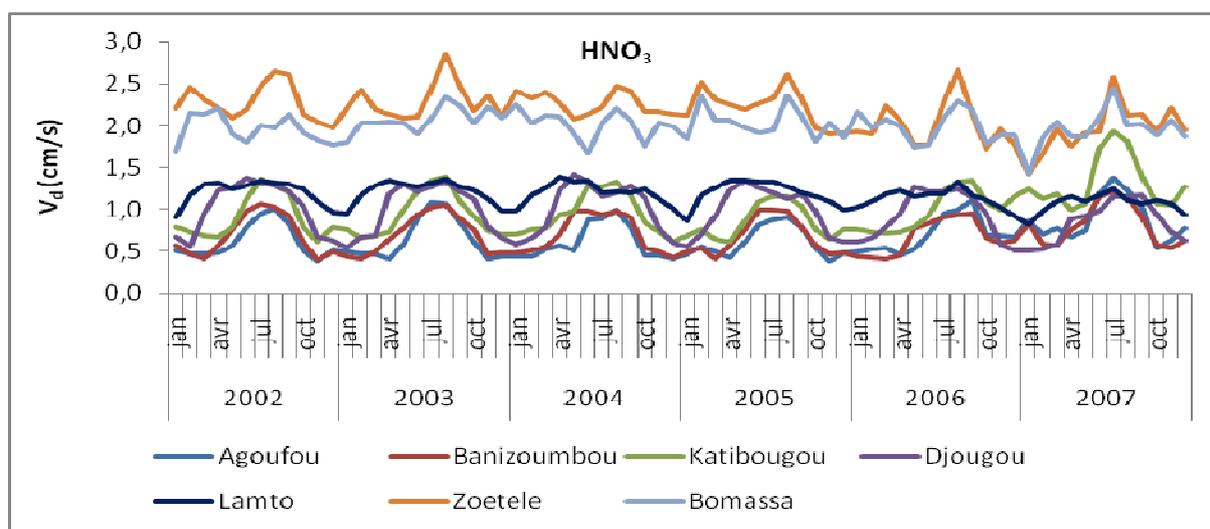
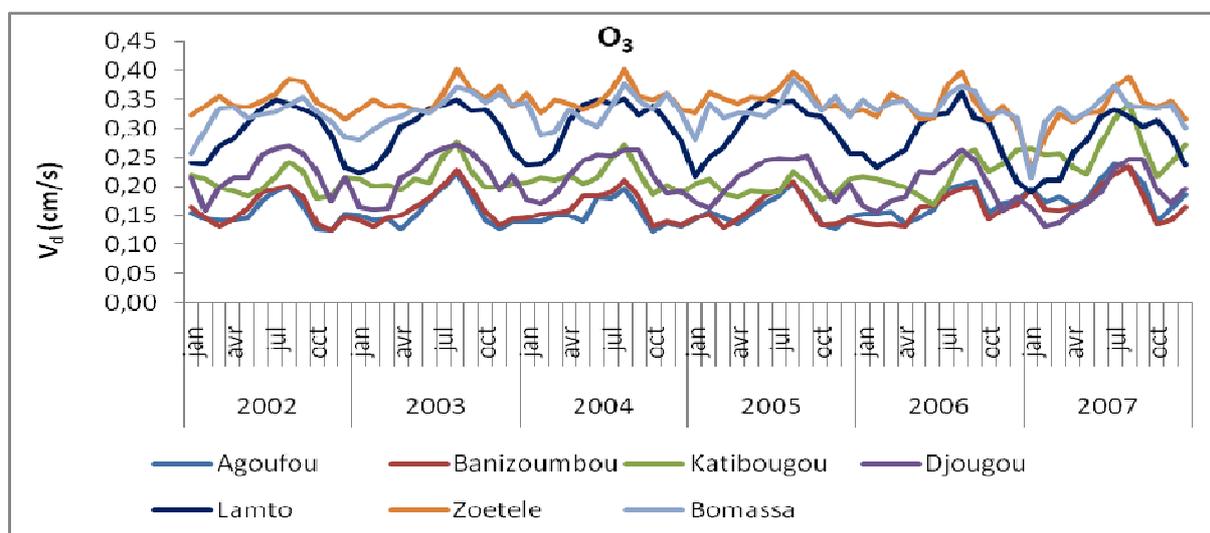
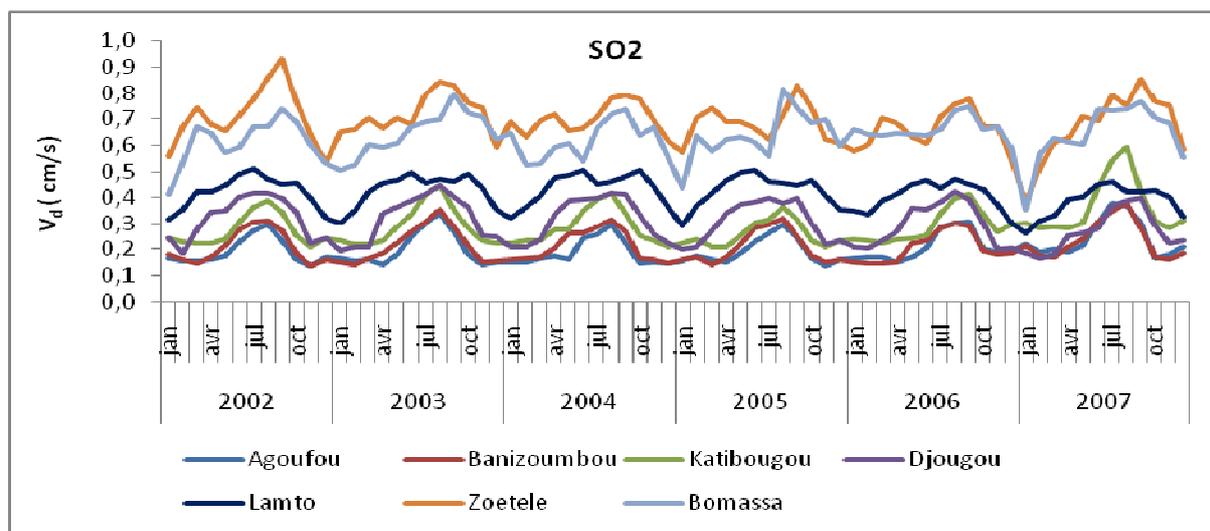


Figures 3 : Variation mensuelle des LAI MODIS moyennés sur la période 2000-2007 pour les sites IDAF, (a) en savanes sèches, (b) en savanes humides, (c) en forêts. Les barres verticales sont les écart-types par rapport à la moyenne. (Figure 4.1 du chapitre 4)

ANNEXE III :

**Variation interannuelle des vitesses de dépôt sec des gaz SO₂, O₃, et HNO₃
pour tous les sites IDAF**

ANNEXE III : Variation interannuelle des vitesses de dépôt sec des gaz SO₂, O₃, et HNO₃ pour tous les sites IDAF



ANNEXE IV (1, 2, 3, 4, 5, 6) :

Tableaux récapitulatifs des vitesses de dépôt sec (V_d) du dioxyde d'azote (1), de l'acide nitrique (2), de l'ammoniac (3), de l'ozone (4) et du dioxyde de soufre (5) dans différents écosystèmes.

(6) : Comparaison des V_d diurnes de SO_2 et O_3 estimées dans cette étude avec celles de la littérature pour la forêt tropicale.

ANNEXE IV-1 : Tableau récapitulatif des vitesses de dépôt sec (V_d) du dioxyde d'azote dans différents écosystèmes

Ecosystèmes	Conditions-paramètres Période-méthode	V_d (NO_2) cm.s^{-1}	Référence
Reserve de Landes (Elspeetsche Veld) Pays-bas	Moyennes mensuelles Technique micro-météorologique du gradient	0,1-0,4	Erisman et al., 1994
Végétation sahélienne (Niger, Mali)	Moyennes mensuelles Méthode inférentielle	0,1-0,33	Delon et al., 2010
Forêts et Terres agricoles Canada (Est)	Moyennes mensuelles Méthodes inférentielle	0,3-0,45 (été) <0,1 (hiver)	Zhang et al. (2005)
Végétations canadienne (Est), forêts (mixte, de feuillus...), herbes, cultures	14 campagnes de terrain Méthode inférentielle	0,07-0,29 ($\approx 0,2$)	Zhang et al. (2009)
-Forêts -Herbe -Désert	Modèle AURAMS- été SR=800 w.m^{-2} U = 8 m.s^{-1} à 10 m	0,41-1 0,60 0,16	Zhang et al. (2002a)
Sol nu	Technique des chambres, Eddy-corrélation	0,13-0,29 (Lamto) 0,1-0,35 0,18-0,85	Serça (1995) Coe et Gallager (1992) Hanson et Lindberg (1991)
Forêt Autriche	forêt de chênes (Oak) LAI 3,5 en Wolkesdorf, H=240 m, jan-Oct 1991	0,26	Puxbaum et Gregori (1998)
Wolkesdorf Végétation	Moyenne annuelle	0,26	Hanson et al. (1989)
-Forêts -herbe	Modèle RDM	5,0 4,5	Brook et al. (1999b)

ANNEXE IV-2 : Tableau récapitulatif des vitesses de dépôt sec (V_d) de l'ammoniac dans différents écosystèmes

Ecosystèmes	Conditions-paramètres	V_d (NH_3)	Référence
Régions-Pays-sites	Période-méthode	$cm.s^{-1}$	
Reserve de Landes (Elspeetsche Veld) Pays-bas	Moyennes annuelles Technique micro-météorologique du gradient	0,8	Erisman et al., 1994
Agriculture Danemark	H = 1m Mai 1995 24 mai-22 juin 1995	1,8 1,0-2,9	Hansen et al. (1998)
Forêt de chênes (Oak) Autriche	Jan-oct. 1991, LAI 3,5 En Wolkesdorf H=240 m	0,81	Puxbaum et Gregori (1998)
Forêts de conifères Allemagne	Saison chaude Avril-octobre 1987	1	Lindberg et al. (1990)
Herbe, zone de pâturage Rondônia, Brésil	12 sept-14 nov 2002	0,5-1,5	Trebs et al. (2006)
Semi naturel et forêt	observée	0,5-5	Sutton et al. (1994)
-Forêts -Herbe -Désert	Modèle AURAMS- été SR=800 $w.m^{-2}$ U = 8 $m.s^{-1}$ à 10 m	0,61-1, 68 0,88 0,15	Zhang et al. (2002a)
Végétations canadienne (Est), forêts (mixte, de feuillus...), herbes, cultures	14 campagnes de terrain Méthode inférentielle	0,2-0,6	Zhang et al. (2009)
-Forêts et Végétations courtes Europe	Méthode inférentielle Plusieurs modèles	0,5-1,0	Flechard et al. (2011)
Végétation sahélienne (Mali, Niger)	Moyennes mensuelles Méthode inférentielle	0,11-0,39	Delon et al. (2010)

ANNEXE IV-3 : Tableau récapitulatif des vitesses de dépôt sec (V_d) de l'acide nitrique dans différents écosystèmes

Ecosystèmes	Conditions-paramètres Période-méthode	V_d (HNO_3) cm.s^{-1}	Référence
Forêt	Printemps	1,0	Andersen and Hovmand (1985)
Forêt de feuillus	été	2,2-6,0 (4,0)	Meyers et al. (1989)
-Forêts -Végétations courtes Europe	Méthode inférentielle Plusieurs modèles	2,5-3,5 1,0-1,2	Flechard et al. (2011)
Herbe	Herbes longues Herbes courtes	3,7 0,0-1,7	Harrison et al. (1989)
Herbe	Pâturage (juin) Eté Eté Herbes courtes	0,0-4,7 (2,5) 1,1-4,9 (2,9) 3,2 0,3-1,8	Huebert and Robert (1985) Huebert (1983) Meyers et al. (1998) Van Aalst and Diederer (1985)
Sahel (Mali, Niger)	Moyenne mensuelle, 2006 Méthode inférentielle	0,34-0,61	Delon et al., 2010
Forêt Autriche	forêt de chênes (Oak) LAI 3,5 en Wolkesdorf, H=240 m, janvier-Octobre 1991	2,39	Puxbaum et Gregori (1998)
Wolkersdorf Végétation	Moyenne annuelle	1,5-4,2	Hanson et al. (1989)
Végétations canadienne (Est), forêts (mixte, de feuillus...), herbes, cultures	14 campagnes de terrain Méthode inférentielle	0,61-2,11 (≈ 1)	Zhang et al. (2009)
-Forêts -Herbe -Désert	Modèle AURAMS- été SR=800 w.m^{-2} U = 8 m.s^{-1} à 10 m	4,1-6,0 2,97 1,9	Zhang et al. (2002a)

ANNEXE IV-4 : Tableau récapitulatif des vitesses de dépôt sec (V_d) de l'ozone dans différents écosystèmes

Ecosystèmes	Conditions-paramètres Période-méthode	V_d (O_3) $cm.s^{-1}$	Référence
Sol nu	Saturée en eau	0,05-0,24	Wesely et al. (1981)
Désert	Printemps	0,0-0,15 (0,065)	Gusten et al. (1996)
Steppe	Semi-aride	0,0-1,43	Sanchez and Rodriguez (1997)
Herbe	-Eté	0,05-0,2	Padro (1996)
	-journée	0,06-1,0 (0,56)	Delany and Davies (1983)
	-Absence de rosée	0,0-0,56	Massman et al. (1994)
	- Eté	0,24	Meyers et al. (1998)
	-Modèle RDM	0,67	Brook et al. (1999b)
Forêts (de feuillus, ...)	-Eté-jour sec	0,0-1,8 (1,0)	Padro et al. (1992, 1994)
	-Eté-jour humide	0,0-1,2	
	-Eté-nuit	0,0-1,2 (0,2)	
	-Modèle RDM	0,5	Brook et al. (1999b)
-Forêt tropicale	Saison sèche (matin)	1,5	Cros et al. (2000)
-Savane boisée	(entre H = 80 et 190 m)	0,4	
Afrique Centrale			
Forêt tropicale (Nord de la Thaïlande)	- journée	0,32	Matsuda et al. (2005)
	-nuit (en Saison sèche)	0,04	
	Méthode du gradient		
Forêt tropicale Amazonie	-Saison humide (24 h)	1,2	Rummel et al. (2007)
	- saison sèche (24 h)	0,6	
	Eddy-corrélation		
Herbe, zone de pâturage Brésil (Rondônia)	-Saison humide (24 h)	0,7	Kirkman et al. (2002)
	- saison sèche (24 h)	0,6	
	Méthode inférentielle		
-forêt de feuillus	-Eté, LAI = 5,0 ; H= 33,4 m	1,0	Padro (1996)
-Forêt (de conifère)	-1 mois (saison de croissance)	0,35-0,48	Finkelstein et al. (2000)

H : hauteur de mesure.

ANNEXE IV-5 : Tableau récapitulatif des vitesses de dépôt sec (V_d) du dioxyde de soufre dans différents écosystèmes

Ecosystèmes	Conditions-paramètres Période-méthode	V_d (SO_2) $cm.s^{-1}$	Référence
Reserve de Landes (Elspeetsche Veld) Forêt (à feuilles caduques)	-Moyennes annuelles jour sec-jour humide nuit sèche-nuit humide Hiver-Eté	0,8-1,0 0,7-2,3 0,7-2,5 0,1-0,5	Erismann et al., 1994 Erismann (1994) Johansson et al. (1983)
Forêt (de feuillus)	-Jour sec d'hiver -Jour humide d'hiver -nuit d'hiver	0,3 0,6 0,1	Erismann (1994)
prairies	jour sec-jour humide nuit sèche-nuit humide Moyennes annuelles -Eté	1,4-1,5 1,3-1,7 1,2 0,58	Erismann (1994) Meyers et al. (1998)
-Herbes courtes -Herbes moyennes -Herbes moyennes	Printemps Hiver Automne	0,85 0,89 1,19	Garland (1977)
Forêts (mixtes, de conifères)	1 mois (saison de croissance) 1997-1998	0,6-0,72	Finkelstein et al. (2000)
-Forêts -Herbe -Désert	Modèle AURAMS- été SR=800 $w.m^{-2}$ U = 8 $m.s^{-1}$ à 10 m	0,47-1,08 0,63 0,15	Zhang et al. (2002a)
Forêt Autriche	forêt de chênes (Oak) LAI 3,5 en Wolkesdorf, H=240 m, janvier-Octobre 1991	0,31	Puxbaum et Gregori (1998)
Forêt de cèdres Japon	Méthode inférentielle	0,88	Takahashi et al. (2001)
Herbes courtes Nord de la Chine	-Eté -Hiver Méthode du gradient	0,2 0,4	Sorimachi et al. (2003)

ANNEXE IV-6 : Comparaison des V_d diurnes de SO_2 et O_3 estimées dans cette étude avec celles de la littérature pour la forêt tropicale.

D'une façon générale, les vitesses de dépôt simulées pour les sites IDAF sont dans la fourchette basse de celles trouvées dans la littérature. Cela pourrait être dû aux faibles vitesses de vent mesurées dans les écosystèmes africains. Toutefois, les vitesses de dépôt de SO_2 et O_3 estimées en sites forestiers sont comparables à celles estimées ou observées en forêt tropicale asiatique (Matsuda et al., 2006 ; Tsai et al., 2010, ...). Afin de comparer nos résultats à ceux de la littérature, nous présentons dans le tableau ci-dessous les vitesses de dépôt (tri-horaires) diurnes des gaz SO_2 et O_3 en forêt tropicale. Nous avons calculé, pour l'année 2006, les moyennes des V_d tri-horaires diurnes pour deux mois de la saison sèche (janvier-février) et deux mois de la saison humide (juillet-août) afin de représenter l'évolution diurne de V_d en saison sèche et humide.

Tableau : Comparaison des vitesses de dépôt sec (V_d) estimées dans cette étude avec celles de la littérature pour la forêt tropicale.

Référence	Saison sèche		Saison humide		Méthode (forêt tropicale de)
	journée	nuit	journée	nuit	
$V_d (O_3)$ en cm/s					
Cette étude	0,54-0,61	0,14-0,18	0,62-0,70	0,15-0,21	Inférentielle (Zoétélé)
Matsuda et al. (2006)	0,37-0,39	0,12-0,13	0,62-0,65	0,25-0,27	gradient (Thaïlande)
Zhang et al. (2003b)			0,73-0,78 (été)	0,11-0,22 (été)	Inférentielle
$V_d (SO_2)$ en cm/s					
Cette étude	0,61-0,67	0,42-0,59	0,72-0,84	0,55-0,71	Inférentielle (Zoétélé)
Tsai et al. (2010)	0,44 (canopées sèches)	0,19	0,83 (canopées humides)	0,47	gradient (Taiwan)
Matsuda et al. (2006)	0,10-0,31	0,08-0,11	0,95-1,39	0,26-0,42	gradient (Thaïlande)
Zhang et al. (2003b)			0,87-2,5 (été)	0,22-1,14 (été)	Inférentielle

Les valeurs de la vitesse de dépôt tri-horaire moyenne d' O_3 et de SO_2 à Zoétélé sont comparables à celles estimées en forêt tropicale (au nord de la Thaïlande) par la méthode du gradient dans Matsuda et al.(2006), surtout pour la saison humide. Pendant la journée, les valeurs élevées de $V_d(O_3)$ sont dues, en grande partie, à l'absorption stomatique qui est conditionnée par la présence du rayonnement solaire. Pendant la nuit, les stomates se ferment

et le dépôt sec à la végétation est contrôlé par l'absorption non-stomatique qui est moins importante pour l'O₃ d'où les faibles valeurs de V_d pendant la nuit. Nous remarquons que pour SO₂, les V_d restent non négligeables pendant la nuit ; l'absorption non-stomatique étant importante pour ces gaz solubles. Les V_d de SO₂ simulées dans notre étude sont de même ordre de grandeur (surtout dans la journée) que celles dans Tsai et al. (2010) qui étaient en moyenne de 0,61 cm.s⁻¹ pendant la journée et 0,27 cm.s⁻¹ pendant la nuit en forêt tropicale dense de Taiwan. De plus, nos simulations sont situées dans la fourchette basse des estimations des vitesses de dépôts typiques prévues par la nouvelle paramétrisation de Zhang et al. (2003b) (voir tableau ci-dessus). A l'issue de cette comparaison, nous pouvons dire que les vitesses de dépôt simulées dans notre étude sont de même ordre de grandeurs que celles observées ou estimées expérimentalement dans d'autres sites tropicaux. Même si très peu d'études sont disponibles pour les écosystèmes tropicaux, ces vitesses de dépôt sec des gaz peuvent donc être valablement utilisées pour estimer les flux de dépôt sec pour les sites IDAF.

ANNEXE V (1,2) :

Tableaux récapitulatifs des flux de dépôt sec des gaz azotés (1) et de l’ozone (2) dans différents écosystèmes

ANNEXE V-1 : Tableau récapitulatif du dépôt sec des gaz azotés dans différents écosystèmes.

Référence	Ecosystème, Site-Paramètre	Flux de dépôt ($\text{kgN}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$)		
		NO_2	HNO_3	NH_3
Flechard (1998)	végétation courte Semi-naturelle Auchencorth Moss/ Europe			2,5
Erisman et al. (1996)	Forêt (de sapin, Douglas) Speulderbos site / Europe	2,8 (NO_x)		17,9
Flechard et al. (2011)	-Forêt (de sapin, Douglas) -Végétation courte semi-naturelle (Auchencorth site) Europe, flux annuel (2007-2008)	3,2 (1,5-5,2) 0,7 (0-1,1)		16,9 2,2
Hanson et al. (1989)	-Forêt naturelle ($V_d=0,18-0,72 \text{ cm/s}$) -Forêt (en milieu urbain)	0,08-1,9 12		
Lindberg et al. (1990)	-Forêt (Oak Ridge) -Forêt (Gttingen)		0,53 1,42	2,96
Huebert and Robert (1985)	Herbe (pâturage), mois de juin Illinois		2,93-3,73 (1,1-1,4 kg/ha/mois)	
Hansen et al. (1998)	Zone agricole intensive (Hjelm Hede) Denmark C (1,1-2,3 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) V_d (1,0-2,9 $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$)			6,0-10,5
Erisman et al. (1989)	(Elspeetsche Veld-Netherlands) 1980-1986 $V_d(0,8 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1})$			9,9-10,7 (12-13 kg/ha/an)
Erisman et al. (1994a)	Reserve de Landes (Elspeetsche Veld, Pays-Bas) $V_d(\text{NH}_3) = 0,8 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ $V_d(\text{NO}_2) = 0,1-0,4 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$	7 (500 mol/ha/an) Flux mensuel		11,9 (850 mol/ha/an) Flux annuel
Kirkman et al. (2002)	Zone de pâturage (FNS* site, Rondonia, Brésil) Flux annuel	0,73		
Trebs et al. (2006)	Zone de pâturage (site FNS*, Rondonia, Brésil) Flux annuel	0,76-2,4		
Zhang et al. (2005)	Herbe courte (75%) et arbres décidus (25%), Egbert, Ontario (Canada), février-Mars 2002	0,44	1,24	
Andersen et al. (1993)	Forêt (Spruce stand) Denmark			6,7
Andersen et al. (1999)	Forêt (Spruce) Jachère et forêt de conifères			1,1-3,5
Duyzer (1994)	Landes, Pays-Bas -Journée ($V_d=1,9 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$) -Moyenne annuelle (24h), $V_d=1,4 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ 1984-1987			13,18 8,24 (10 kg/ha/an)

*FNS : Fazenda Nossa Senhora Aparecida (site de mesure des campagnes LBA-EUSTACH)

ANNEXE V-2 : Tableau récapitulatif des flux de dépôt d’ozone observés au-dessus des écosystèmes tropicaux.

Référence (lieu)	Site-paramètres	Flux (kg(O ₃)/ha/an)	Condition	Méthode
Cros et al.(2000) Congo/République Centre Afrique	-Savane (V _d =0,4cm/s) -Forêt tropicale (V _d =1,5 cm.s ⁻¹) C _{max} =95 ppb	0,115-0,35 ppbv m/s	Saison sèche Matin Nov/déc 1996	Eddy corrélation (Mesures aéroportées)
Cros et al. (1992) Nord du Congo	Forêt tropicale V _d = 5 cm.s ⁻¹	15 nmol.m ⁻² .s ⁻¹	Saison sèche (fin) Matin Févr 1988	gradient
Andreae et al. (1992) Nord du Congo	Forêt tropicale V _d = 1,2 cm.s ⁻¹	2,5 nmol.m ⁻² .s ⁻¹	Saison sèche (fin) nuit	Mesure aéroportée du profile d’O ₃
Fan et al. (1990) Amazonie Centrale	Forêt tropicale -V _d = 1,8 cm.s ⁻¹ -V _d = 0,26 cm.s ⁻¹	3,8 nmol.m ⁻² .s ⁻¹ 0,37 nmol.m ⁻² .s ⁻¹	Saison humide -journée -nuit Avr/mai 1987	Eddy corrélation
Rummel et al.,(2007) Sud-Ouest de l’Amazonie LBA-EUSTACH	Forêt tropicale -V _d = 1,2 cm.s ⁻¹ -V _d = 0,6 cm.s ⁻¹ C _{max} =80 ppb	2,93 nmol.m ⁻² .s ⁻¹ 5,69 nmol.m ⁻² .s ⁻¹	Journalière (24h) -Saison humide - saison sèche Mai, sept, oct 1999	Eddy corrélation
Kirkman et al. (2002) Brésil (Rondonia) LBA-EUSTACH*	Zone de pâturage V _d = 0,6-0,7 cm.s ⁻¹	2,04 nmol.m ⁻² .s ⁻¹ 4,68 nmol.m ⁻² .s ⁻¹	Journalière (24h) -Saison humide - saison sèche Avr, mai, sept, oct 1999	Méthode inférentielle
Matsuda et al., 2005 Nord de la Thaïlande	Forêt tropicale décidue V _d =0,32 cm.s ⁻¹	0,5 µg.m ⁻² .s ⁻¹	Saison sèche (journée) Janv-avr 2002	gradient

*LBA-EUSTACH: Large-scale Biosphere-atmosphere / EUROpean Studies on Trace gases and Atmospheric Chemistry